

Dated: October 11, 2000

Our Case Deposit No.: SHX 314



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of

Hitsohi Kihara et al.

For: APPARATUS, METHOD FOR ENRICHMENT OF THE HEAVY ISOTOPES OF OXYGEN AND PRODUCTION METHOD FOR HEAVY OXYGEN WATER

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

SUBMISSION OF CERTIFIED COPY OF FOREIGN APPLICATION
UNDER 37 C.F.R. § 1.55(a)

Enclosed is a certified copy of Japanese Application No. 11-290259, upon which foreign priority under 35 U.S.C. § 119 has been claimed in the above identified application.

Respectfully submitted,

KOLISCH, HARTWELL, DICKINSON,
McCORMACK & HEUSER

Charles H. DeVoe
Customer No. 23581
Registration No. 37,305
Of Attorneys for Applicants
520 S.W. Yamhill Street, Suite 200
Portland, Oregon 97204
Telephone: (503) 224-6655
Facsimile: (503) 295-6679

CHD:gp
Enclosures

"Express Mail" Mailing Label No. EL684728741US
Date of Deposit - October 11, 2000

I hereby certify that the enclosed correspondence is being deposited with the United States Postal Service "Express Mail Post Office to Addressee" service under 37 C.F.R. § 1.10 on the date indicated above and is addressed to the Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C. 20231.

Signature of person depositing

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JC917 U.S. PTO
09/689297
10/11/00

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application: 1999年10月12日

出 願 番 号

Application Number: 平成11年特許願第290259号

出 願 人

Applicant(s): 日本酸素株式会社

2000年 7月28日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造

出証番号 出証特2000-3059919

【書類名】 特許願

【整理番号】 J79659A1

【提出日】 平成11年10月12日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B01D 59/00

【発明の名称】 蒸留装置並びに酸素同位体重成分の濃縮方法および重酸素水の製造方法

【請求項の数】 11

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区西新橋 1 丁目 1 6 番 7 号 日本酸素株式会社
内

【氏名】 木原 均

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区西新橋 1 丁目 1 6 番 7 号 日本酸素株式会社
内

【氏名】 橘 博志

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区西新橋 1 丁目 1 6 番 7 号 日本酸素株式会社
内

【氏名】 林田 茂

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区西新橋 1 丁目 1 6 番 7 号 日本酸素株式会社
内

【氏名】 川上 浩

【特許出願人】

【識別番号】 000231235

【氏名又は名称】 日本酸素株式会社

【代理人】

【識別番号】 100064908

【弁理士】

【氏名又は名称】 志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】 100108578

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 詔男

【選任した代理人】

【識別番号】 100089037

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡邊 隆

【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

【弁理士】

【氏名又は名称】 青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100094400

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 三義

【選任した代理人】

【識別番号】 100106493

【弁理士】

【氏名又は名称】 松富 豊

【選任した代理人】

【識別番号】 100107836

【弁理士】

【氏名又は名称】 西 和哉

【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【弁理士】

【氏名又は名称】 村山 靖彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008707

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9706458

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 蒸留装置並びに酸素同位体重量成分の濃縮方法および重酸素水の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 カスケードに構成した複数の蒸留塔（第1塔～第 n 塔）を用いて、複数成分よりなる気体又は液体を蒸留分離する装置であって、

第 k 塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔底部付近に設けた蒸発器の出口と、第 $(k+1)$ 塔の塔頂部あるいは該塔頂部付近に設けた凝縮器の入口または該塔の中間部とを連結する導入経路と、

第 $(k+1)$ 塔の凝縮器出口と、第 k 塔の塔底部付近に設けた蒸発器の入口あるいは該塔の塔底部または該塔の中間部とを連結する返送経路を設けたことを特徴とする蒸留装置。

【請求項 2】 カスケードに構成した複数の蒸留塔（第1塔～第 n 塔）を用いて、複数成分よりなる気体又は液体を蒸留分離する装置であって、

第 k 塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔底部付近に設けた蒸発器の出口と、第 $(k+1)$ 塔の塔頂部あるいは該塔頂部付近に設けた凝縮器の入口または該塔の中間部とを連結する導入経路と、

第 $(k+1)$ 塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器の入口と、第 k 塔の塔底部または該塔の中間部とをブロワを介して連結する返送経路を設けたことを特徴とする蒸留装置。

【請求項 3】 前記蒸留塔の少なくとも 1 塔が、規則充填物（自己分配促進型充填物あるいは非自己分配促進型充填物）を用いた充填塔、あるいは濡れ壁塔であることを特徴とする請求項 1 または 2 の蒸留装置。

【請求項 4】 前記請求項 1 または 2 に記載の蒸留装置に同位体スクランブラーを設け、該装置の少なくとも 1 ヶ所と同位体スクランブラー入口を連結する取出経路と該装置の少なくとも 1 ヶ所と同位体スクランブラー出口を連結する返送経路とにより接続したことを特徴とする蒸留装置。

【請求項 5】 前記第 n 塔の後段に水素添加装置を設けたことを特徴とする前記請求項 1 ～ 4 項のいずれか 1 項に記載の蒸留装置。

【請求項 6】 酸素同位体重成分を含む原料酸素を、複数の蒸留塔（第1塔～第n塔）で構成するカスケードプロセスにより濃縮するに際し、

第k塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔塔底部付近に設けた蒸発器出口のガスの少なくとも一部を、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器入口あるいは該塔の中間部に供給し、且つ、

第(k+1)塔の塔頂部または該塔の凝縮器出口の液体の少なくとも一部を、第k塔の蒸発器入口あるいは塔底部あるいは塔の中間部に返送することにより酸素同位体重成分を含む酸素分子 $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ のうち少なくとも一種を濃縮することを特徴とする酸素同位体の濃縮方法。

【請求項 7】 酸素同位体重成分を含む原料酸素を、複数の蒸留塔（第1塔～第n塔）で構成するカスケードプロセスにより濃縮するに際し、

第k塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔塔底部付近に設けた蒸発器出口のガスの少なくとも一部を、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器入口あるいは該塔の中間部に供給し、且つ、

第(k+1)塔の塔頂部を導出したガスまたは凝縮器入口のガスの少なくとも一部を、ブロワによって昇圧し、第k塔の塔底部あるいは該塔の中間部に返送することにより酸素同位体重成分を含む酸素分子 $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ のうち少なくとも一種を濃縮することを特徴とする酸素同位体の濃縮方法。

【請求項 8】 前記請求項 6 または 7 の濃縮方法により濃縮した酸素同位体濃縮物を、酸素同位体スクランブリングに供し、前記酸素同位体重成分を含む酸素分子の少なくとも一種の濃度を更に高めた濃縮物を得ることを特徴とする酸素同位体の濃縮方法。

【請求項 9】 前記請求項 6 または 7 の濃縮方法により濃縮した酸素同位体濃縮物を、酸素同位体スクランブリングに供し、前記酸素同位体重成分を含む酸素分子の少なくとも一種の濃度を高めた濃縮物を得、該濃縮物をさらに前記請求項 6 または 7 の方法によって前記酸素同位体重成分を含む酸素分子の少なくとも一種の濃度を更に高めた濃縮物を得ることを特徴とする酸素同位体の濃縮方法。

【請求項 10】 請求項 1 または 2 記載の蒸留装置を用いて酸素同位体重成

分を含む原料酸素を低温蒸留することにより酸素同位体重成分を含む酸素分子の内の少なくとも一成分を濃縮した濃縮物を得、該濃縮物に水素を添加して該濃縮物に対応する重酸素水を含む水を得た後、該重酸素水を前記請求項 1 または 2 記載の蒸留装置によりさらに濃縮することを特徴とする重酸素水の製造方法。

【請求項 11】 重酸素水を含む原料水を、複数の蒸留塔（第1塔～第n塔）で構成するカスケードプロセスにより濃縮するに際し、

第k塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔塔底部付近に設けた蒸発器出口の水蒸気の少なくとも一部を、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器入口あるいは該塔の中間部に供給し、且つ、

第(k+1)塔の塔頂部または該塔の凝縮器出口の水の少なくとも一部を、第k塔の蒸発器入口あるいは塔底部あるいは塔の中間部に導入することにより酸素同位体重成分を含む重酸素水 $H_2^{17}O$ 、 $H_2^{18}O$ 、 $D_2^{17}O$ 、 $D_2^{18}O$ 、 $DH^{17}O$ および $DH^{18}O$ のうち少なくとも一種を濃縮することを特徴とする重酸素水の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、同一化合物内の同位体を分離・濃縮する装置に関し、水分子中の酸素の同位体 ^{17}O あるいは ^{18}O （酸素同位体重成分と呼ぶ）を濃縮した重酸素水を得る装置および方法に関し、詳しくは酸素の低温蒸留により $^{16}O^{17}O$ 、 $^{16}O^{18}O$ 、 $^{17}O^{17}O$ 、 $^{17}O^{18}O$ 、および $^{18}O^{18}O$ を濃縮した後、水に変換し、酸素の同位体 ^{17}O あるいは ^{18}O を濃縮した水を製造する方法、および酸素の低温蒸留により $^{16}O^{17}O$ 、 $^{16}O^{18}O$ 、 $^{17}O^{17}O$ 、 $^{17}O^{18}O$ 、および $^{18}O^{18}O$ を濃縮した後、水に変換し、水蒸留によってさらに酸素の同位体 ^{17}O あるいは ^{18}O を濃縮した水を製造する方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

同位体の蒸留分離プロセスに代表されるように、蒸気圧比（分離係数）の非常に小さな系における蒸留操作では非常に大きな理論段数が必要となる。

このような場合には、蒸留塔の圧力損失を抑えるため一般的に充填塔が用いら

れているが、それに必要な充填高さは理論上数百mに達することが少なくない。

したがって、実際の蒸留装置では、複数の蒸留塔を配管でつなぎ、全体として一つの蒸留塔群を構成する。

図18は3つの蒸留塔を備え、各蒸留塔（第1ないし第3塔61、62、63）を接続した蒸留装置の例を示したものである。

この装置においては、第1塔61および第2塔62の塔底に溜まった液体が、液ポンプ61a、62aによりそれぞれ第2塔62および第3塔63の塔頂へ還流液として供給される。第2塔62および第3塔63の塔頂から導出されたガスは、それぞれ第1塔61および第2塔62塔底部に上昇ガスとして返送される。

このプロセスでは、第1塔61から第2塔62、第2塔62から第3塔63へのプロセス流体の供給は液ポンプ61a、62aで行われるが、第2塔62から第1塔61、第3塔63から第2塔62へのプロセス流体の返送はガスの圧力差で行われるため、蒸留塔内の圧力は第1塔61から第3塔63に向かって順に高くなければならない。一般に分離成分の蒸気圧比（分離係数）は蒸留塔の操作圧力が高いほど小さいため、第1塔61よりも第2塔62、第2塔62よりも第3塔63の方が蒸留性能は低下する。

また、一般的に同位体分離プロセスのように分離成分の蒸気圧比が非常に小さく充填高さが非常に大きい場合には、装置を起動してから規定量（仕様通りの採取量、計画値）の製品を採取できるようになるまでの時間（以下、起動時間）が数ヶ月～数年かかる場合がある。したがって、起動時間の短縮は従来からの課題であった。

起動時間は装置内のプロセス流体のホールドアップに大きく依存し、その量が多いほど長くなる。

【0003】

図19は図18に示す装置と同じ機能を有する蒸留プロセスにおいて、各塔71、72、73に凝縮器5、7、9および蒸発器6、8、10を設けたものである。これは複数の蒸留塔から構成されるプロセスにおいて一般的に用いられる装置で、このような装置では、原料がフィードされる塔71から下流側の塔73にかけて蒸留塔の塔径が小さくなる。

これにより、装置内のプロセス流体のホールドアップを減少させ、起動時間の短縮を図ることができる。

しかし、このような装置を用いた場合でも、第 1 塔 7 1 から第 3 塔 7 3 に向かって蒸留塔内の圧力が高くなるため、図 1 8 に示す装置の場合と同様に、第 1 塔 7 1 よりも第 2 塔 7 2、第 2 塔 7 2 よりも第 3 塔 7 3 の方が蒸留性能が低下する。

蒸留性能の低下は蒸留塔の所要充填高さの増大、ひいてはプロセス流体のホールドアップの増大につながるため、起動時間短縮の観点から望ましくない。

また従来の同位体蒸留プロセスでは、不規則充填物による充填塔が用いられていた。一般に不規則充填物は規則充填物に比べ、比表面積は大きい、蒸留塔内の液ホールドアップが塔体積の 10～20%、場合によっては 20% を越えることがあり、起動時間を長くする一因となっていた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記事情に鑑みてなされたもので、その目的は、複数の蒸留塔から構成される蒸留装置において、従来よりも起動時間が短い装置を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、本発明の蒸留装置は、カスケードに構成した複数の蒸留塔（第 1 塔～第 n 塔）を用いて、複数成分よりなる気体又は液体を蒸留分離する装置であって、第 k 塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔底部付近に設けた蒸発器の出口と、第 $(k+1)$ 塔の塔頂部あるいは該塔頂部付近に設けた凝縮器の入口または該塔の中間部とを連結する導入経路と、第 $(k+1)$ 塔の凝縮器出口と、第 k 塔の塔底部付近に設けた蒸発器の入口あるいは該塔の塔底部または該塔の中間部とを連結する返送経路を設けたことを特徴とする蒸留装置である。

また本発明装置は、カスケードに構成した複数の蒸留塔（第 1 塔～第 n 塔）を用いて、複数成分よりなる気体又は液体を蒸留分離する装置であって、第 k 塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔底部付近に設けた蒸発器の出口と、第 $(k+1)$

塔の塔頂部あるいは該塔頂部付近に設けた凝縮器の入口または該塔の中間部とを連結する導入経路と、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器の入口と、第k塔の塔底部または該塔の中間部とをブロワを介して連結する返送経路を設けたことを特徴とする蒸留装置である。

また本発明装置は、前記蒸留塔の少なくとも1塔が、規則充填物（自己分配促進型充填物あるいは非自己分配促進型充填物）を用いた充填塔、あるいは濡れ壁塔であることを特徴とする蒸留装置である。

また本発明装置は、前記蒸留装置に同位体スクランブラーを付設し、該装置の少なくとも1ヶ所と同位体スクランブラー入り口を連結する取出経路と該装置の少なくとも1ヶ所と同位体スクランブラー出口を連結する返送経路とにより接続したことを特徴とする蒸留装置である。

また本発明装置は、前記第n塔の後段に水素添加装置を設けたことを特徴とする蒸留装置である。

また本発明装置は、前記第n塔の後段に水素添加装置を設け、さらにその後段に、別の前記カスケードに構成した複数の蒸留塔（第1塔～第N塔）を設けたことを特徴とする蒸留装置である。

本発明の酸素同位体の濃縮方法は、酸素同位体重成分を含む原料酸素を、複数の蒸留塔（第1塔～第n塔）で構成するカスケードプロセスにより濃縮するに際し、第k塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔塔底部付近に設けた蒸発器出口のガスの少なくとも一部を、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器入口あるいは該塔の中間部に供給し、且つ、第(k+1)塔の塔頂部または該塔の凝縮器出口の液体の少なくとも一部を、第k塔の蒸発器入口あるいは塔底部あるいは塔の中間部に返送することにより酸素同位体重成分を含む酸素分子 $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ のうち少なくとも一種を濃縮することを特徴とする酸素同位体の濃縮方法である。

また本発明方法は、酸素同位体重成分を含む原料酸素を、複数の蒸留塔（第1塔～第n塔）で構成するカスケードプロセスにより濃縮するに際し、第k塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔塔底部付近に設けた蒸発器出口のガスの少なくとも一部を、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器入口ある

いは該塔の中間部に供給し、且つ、第(k+1)塔の塔頂部を導出したガスまたは凝縮器入口のガスの少なくとも一部を、ブロワによって昇圧し、第k塔の塔底部あるいは該塔の中間部に返送することにより酸素同位体重成分を含む酸素分子 $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ のうち少なくとも一種を濃縮することを特徴とする酸素同位体の濃縮方法である。

また本発明方法は、前記濃縮方法により濃縮した酸素同位体濃縮物を、酸素同位体スクランブリングに供し、前記酸素同位体重成分を含む酸素分子の少なくとも一種の濃度を高めた濃縮物を得ることを特徴とする酸素同位体の濃縮方法である。

また本発明方法は、前記濃縮方法により濃縮した酸素同位体濃縮物を、酸素同位体スクランブリングに供し、前記酸素同位体重成分を含む酸素分子の少なくとも一種の濃度を高めた濃縮物を得、該濃縮物をさらに前記濃縮方法によって前記酸素同位体重成分を含む酸素分子の少なくとも一種の濃度を高めた濃縮物を得ることを特徴とする酸素同位体の濃縮方法である。

また本発明の重酸素水の製造方法は、前記蒸留装置を用いて酸素同位体重成分を含む原料酸素を低温蒸留することにより酸素同位体重成分を含む酸素分子の内の少なくとも一成分を濃縮した濃縮物を得、該濃縮物に水素を添加して該濃縮物に対応する重酸素水を含む水を得る方法である。そして、この後、該重酸素水を前記蒸留装置によりさらに濃縮することを特徴とする重酸素水の製造方法である。

また本発明方法は、重酸素水を含む原料水を、複数の蒸留塔（第1塔～第n塔）で構成するカスケードプロセスにより濃縮するに際し、第k塔（ $1 \leq k \leq (n-1)$ ）の塔底部あるいは該塔塔底部付近に設けた蒸発器出口の水蒸気の少なくとも一部を、第(k+1)塔の塔頂部あるいは塔頂部付近に設けた凝縮器入口あるいは該塔の中間部に供給し、且つ、第(k+1)塔の塔頂部または該塔の凝縮器出口の水の少なくとも一部を、第k塔の蒸発器入口あるいは塔底部あるいは塔の中間部に導入することにより酸素同位体重成分を含む重酸素水 H_2^{17}O 、 H_2^{18}O 、 D_2^{17}O 、 D_2^{18}O 、 DH^{17}O および DH^{18}O のうち少なくとも一種を濃縮することを特徴とする重酸素水の製造方法である。

【0 0 0 6】

【発明の実施の形態】

図 1 は、本発明の蒸留装置の第 1 の実施形態例を示すもので、ここに示す蒸留装置は、カスケードに構成した 3 つの蒸留塔、すなわち第 1 塔 1、第 2 塔 2、および第 3 塔 3 を備えている。

なお、蒸留塔をカスケードに構成するとは、一つの蒸留塔で濃縮された製品を、さらに次の蒸留塔で濃縮し、それをさらに次の蒸留塔で濃縮することができるように蒸留塔を接続することをいい、このように構成された蒸留塔全体をカスケードプロセスという。

また図中破線で示す経路は本実施形態例の変形例であり、本実施形態例の装置に含まれない。

【0 0 0 7】

これら第 1 ないし第 3 塔 1、2、3 の塔頂部付近には、それぞれ塔 1、2、3 の塔頂部から導出されたガスの少なくとも一部を冷却し液化させる第 1 塔凝縮器 5、第 2 塔凝縮器 7、第 3 塔凝縮器 9 が設けられている。

凝縮器 5、7、9 は、それぞれ塔 1、2、3 の塔頂部から導出されたガスが導入される第 1 流路 5 a、7 a、9 a と、熱媒体流体が流通する第 2 流路 5 b、7 b、9 b を有し、上記導出ガスを熱媒体流体と熱交換させることにより冷却し液化させることができるようになっている。

凝縮器 5、7、9 としては、プレートフィン型熱交換器を用いるのが好ましい。

なお図示例では凝縮器 5、7、9 を塔 1、2、3 の外部に設けたが、塔 1、2、3 の塔頂部内部に設けてもよい。

【0 0 0 8】

塔 1、2、3 の塔底部付近には、それぞれ塔 1、2、3 の塔底部から導出された液の少なくとも一部を加熱し気化させる第 1 塔蒸発器 6、第 2 塔蒸発器 8、第 3 塔蒸発器 10 が設けられている。

蒸発器 6、8、10 は、それぞれ塔 1、2、3 から導出された液が導入される第 1 流路 6 a、8 a、10 a と、熱媒体流体が流通する第 2 流路 6 b、8 b、1

Obを有し、上記導出液を熱媒体流体と熱交換させることにより加熱し気化させることができるようになっている。

蒸発器6、8、10としては、プレートフィン型熱交換器を用いるのが好ましい。またこれらの蒸発器の取り付け位置は、液ホールドアップを低減するために各蒸留塔下部の液溜の液量が運転可能な範囲で最小となるような位置とする。

なお図示例では蒸発器6、8、10を塔1、2、3の外部に設けたが、塔1、2、3の塔底部内部に設けてもよい。この場合はコイル式熱交換器としても良い。

【0009】

本実施形態例の蒸留装置では、第1塔1の塔底部付近に設けられた第1塔蒸発器6の出口（第1流路6aの出口）と、第2塔2の塔頂部付近に設けられた第2塔凝縮器7の入口（第1流路7aの入口）とが、弁12vを介して第1の導入経路12で接続されている。

同様に、第2塔蒸発器8の出口（第1流路8aの出口）と、第3塔凝縮器9の入口（第1流路9aの入口）とは弁13vを介して第2の導入経路13で接続されている。

【0010】

また第2塔凝縮器7の出口（第1流路7aの出口）と、第1塔蒸発器6の入口（第1流路6aの入口）とは、弁14vを介して第1の返送経路14で接続されている。

同様に、第3塔凝縮器9の出口（第1流路9aの出口）と、第2塔蒸発器8の入口（第1流路8aの入口）とは、弁15vを介して第2の返送経路15で接続されている。

この弁14v、弁15vの取り付け位置は各返送経路14、15の上方部（凝縮器の近く）で、後記する複数塔のカスケード連結における第K塔と第K+1塔の圧力差が、このカスケードシステムが作動するような各塔間の圧力差になるようなヘッド圧が得られる位置に設ける。

【0011】

第1ないし第3塔1、2、3の内部には、規則充填物11が充填されている。

規則充填物 1 1 としては、非自己分配促進型規則充填物および／または自己分配促進型規則充填物を好適に用いることができる。

非自己分配促進型規則充填物は、蒸留塔内を下降する液流と蒸留塔内を上昇するガス流がその表面に沿って対向して流れ、かつ塔軸に垂直な断面方向の液流とガス流の混合が促進されずに気液接触が行われる形状・構造を有する充填物であり、例えばアルミニウム、銅、アルミニウムと銅の合金、ステンレススチール、各種プラスチック等からなる多数の板状物または管等を主流れ方向（塔軸方向）に平行に配置したものを挙げることができる。

ここで、主流れとは蒸留塔内で塔軸方向に沿って下降する液流および上昇するガス流を示すもので、充填材表面における液流とガス流の界面（すなわち境界層）で生じる物質移動の流れに対しての塔軸方向の流れを指すものである。

【 0 0 1 2 】

典型的な非自己分配促進型規則充填物の例を図 2 および図 3 に示す。

図 2 に示す非自己分配促進型規則充填物 5 1 は、塔軸方向に平行な板材からなるハニカム状の構造物である。

また、図 3 に示す非自己分配促進型規則充填物 5 2 は、互いに平行な複数の板材 5 2 a と、これら板材 5 2 a に対し垂直な複数の板材 5 2 b からなる格子状構造物を塔軸方向に沿って配置したものである。

【 0 0 1 3 】

自己分配促進型規則充填物は、蒸留塔内を下降する液流と蒸留塔内を上昇するガス流とを、該規則充填物の主として表面において気液接触させ、この際、液流とガス流が該規則充填物の表面上を塔軸方向に沿う主流れ方向に互いに対向して流れると同時に、該主流れ方向に対し直角方向に液流および／またはガス流の混合が促進されつつ気液接触が行われる形状・構造を有する充填物であり、アルミニウム、銅、アルミニウムと銅の合金、ステンレススチール、各種プラスチック等の薄板を各種規則形状に成形し、これを積層構造のブロック状にしたもので、構造化充填物とも称される。

【 0 0 1 4 】

典型的な自己分配促進型規則充填物の例を図 4 ないし図 6 に示す。

図 4 に示す自己分配促進型規則充填物 5 3 は、波型形状の複数の薄板を、塔軸線に平行に配置し、互いに接触するように積層してブロック状にしたもので、各薄板の波状溝は、塔軸線に対して傾斜し、かつ隣接する波型薄板はそれらの波状溝の形成方向が交差するように配置されている。さらに各薄板が水平面に対し垂直になるように配置された状態で、各薄板には塔軸線に対し直角をなす方向に沿って多数の列を形成して、かつ互いに間隔をおいて多数の孔 5 3 a が設けられている。

図 5 は自己分配促進型規則充填物の他の例の構成単位を示すもので、ここに示す自己分配促進型規則充填物 5 4 は、薄板を波状に成形して波状溝を形成するとともに、薄板に、波状溝に対し所定の角度をなす方向に形成された微小な波型溝（ひだ）5 4 b を更に設けた点に特徴がある。符号 5 4 a は薄板に形成された孔を示す。

図 6 に示す自己分配促進型規則充填物 5 5 は、波型薄板上に、波状溝に対し所定の角度をなす方向に形成された微小な波型溝（ひだ）5 5 b が設けられた部分と、これを設けない平滑な部分とが交互に配置された構造を有することを特徴とするものである。符号 5 5 a は薄板に形成された孔を示す。

【0 0 1 5】

以下、本発明の蒸留装置の第 1 の実施形態例である上記図 1 の装置を用いた場合を例として、本発明の酸素同位体重量成分の濃縮方法の第 1 の実施形態例を詳細に説明する。

まず、第 1 塔 1 の中間部（高さ方向中間部）に接続されたフィード部である経路 2 0 を通して、原料酸素ガスを第 1 塔フィード 1 0 1 として塔 1 内に供給する。

上記原料酸素ガスとしては、高純度酸素を用いるのが望ましい。高純度酸素としては、予めアルゴン、炭化水素類、クリプトン、キセノン、弗素化合物（パーフルオロカーボン等）などの不純物を除去し、純度を 9 9 . 9 9 9 % 以上となるまで高めたものを用いることができる。特に炭化水素が除去された原料酸素を用いることが安全上好ましい。

【0 0 1 6】

第1塔1内に供給された原料酸素ガスは、塔1内を上昇し充填物11を通過する際に、後述の還流液（下降液）と気液接触し蒸留される。

原料酸素ガス中、同位体重成分を含む酸素分子（ $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ ）は、高沸点であるため凝縮しやすく、気液接触の過程で、下降液中の同位体重成分濃度は増加し、上昇ガス中の同位体重成分濃度は減少する。

重成分濃度が減少し塔頂部に達した上昇ガスは、経路21を通して塔1から導出された後、二分され、一方は第1塔凝縮器5の第1流路5aに導入され、ここで第2流路5b内を流れる熱媒体流体と熱交換して凝縮し還流液として塔1の上部に戻され、他方は経路22を通して廃ガス103として系外に排出される。

【0017】

第1塔1の塔頂部に戻された還流液は、規則充填物11の表面を下降液となって流下しつつ塔1内を上昇する原料酸素ガス、および後述の上昇ガスと気液接触し、塔1の塔底部に到達する。

この気液接触の過程において、下降液中には液化しやすい酸素同位体重成分を含む酸素分子（ $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ ）が濃縮される。

【0018】

第1塔1の塔底部に達した下降液（以下、各塔の塔底部に溜まった液を塔底部液という）は、経路23を通して塔1から導出され、上述の第1の返送経路14において後述の第1の返送液107と合流して第1塔蒸発器6の第1流路6aに導入され、ここで第2流路6b内を流れる熱媒体流体と熱交換して気化した後、酸素同位体重成分が濃縮した濃縮物である第1塔導出ガス102として上述の第1の導入経路12を通して蒸発器6から導出される。

【0019】

蒸発器6から導出された第1塔導出ガス102の一部は、経路24を通して塔1の下部に戻されて塔1内を上昇する上昇ガスとなり、他部は、第2塔フィードガス104として導入経路12を通して後述の第2塔塔頂ガス106と合流し第2塔凝縮器7に導入され、ここで凝縮し返送経路14を通して凝縮器7から導出

された後、二分される。

二分された凝縮液のうち一方は、第1の返送経路14を通し弁14vを介して第1の返送液107として上記第1塔塔底部液と合流した後、上記第1塔蒸発器6に導入される。

返送液107の返送は、凝縮器7を液化して導出し、経路14を流下する凝縮液自身の重量によって行われる。

【0020】

本実施形態例の方法では、第2塔凝縮器7を経た凝縮液のうち一部を第1の返送液107として第1塔蒸発器6に戻し、該返送液は自身の重量（ヘッド圧）で蒸発器6を経由して第1塔1へ導入されるので、第2塔2内の塔頂部の圧力を第1塔1の底部の圧力より低くすることができる。

かくして上述の第2塔フィードガス104を経路12、25を通して第2塔2に送ることができる。

【0021】

凝縮器7から導出され二分された凝縮液のうち他方は経路25を通して第2塔還流液104として第2塔2上部に供給され、下降液となって第2塔2内の上昇ガスと気液接触しつつ第2塔2の塔底部に到達する。

この気液接触の過程において、上昇ガス中の同位体重成分濃度が減少するとともに、下降液中にはさらに酸素同位体重成分が濃縮される。

【0022】

重成分濃度が減少し塔頂部に達した上昇ガスは、経路28を通して塔2から導出され、塔頂ガス106として上記導入経路12で第2塔フィードガス104と合流する。

【0023】

酸素同位体重成分が濃縮された濃縮物である第2塔2の塔底部液は、経路26を通して塔2から導出され、上述の第2の返送経路15において後述の第2の返送液112に合流して第2塔蒸発器8に導入され、ここで気化した後、酸素同位体重成分が濃縮した濃縮物である第2塔導出ガス105として上述の第2の導入経路13を通して蒸発器8から導出される。

【0024】

蒸発器 8 から導出された第 2 塔導出ガス 105 の一部は経路 27 を通して塔 2 の下部に戻されて塔 2 内を上昇する上昇ガスとなり、他部は、第 3 塔フィードガス 108 として導入経路 13 を通して、後述の第 3 塔塔頂ガス 111 と合流し、第 3 塔凝縮器 9 に導入され、ここで凝縮し、第 2 の返送経路 15 を通して凝縮器 9 から導出された後、二分される。

二分された凝縮液のうち一方は、第 2 の返送経路 15 を通し弁 15v を介して第 2 の返送液 112 として上記第 2 塔蒸発器 8 に導入される。

返送液 112 の返送は、凝縮器 9 を液化して導出し、経路 15 を流下する凝縮液自身の重量によって行われる。

【0025】

本実施形態例の方法では、第 3 塔凝縮器 9 を経た凝縮液のうち一部を第 2 の返送液 112 として第 2 塔蒸発器 8 に戻し、該返送液は自身の重量（ヘッド圧）で蒸発器 8 を経由して第 2 塔 2 へ導入されるので、第 3 塔 3 内の塔頂部の圧力を第 2 塔 2 の底部より低くすることができる。

かくして、上記の第 3 塔フィードガス 108 を経路 13、29 を通して第 3 塔 3 に送ることができる。

【0026】

凝縮器 9 から導出され二分された凝縮液のうち他方は経路 29 を通して第 3 塔還流液 108 として第 3 塔 3 上部に供給され、下降液となって第 3 塔 3 内の上昇ガスと気液接触しつつ第 3 塔 3 の塔底部に到達する。

この気液接触の過程において、上昇ガス中の同位体重成分濃度が減少するとともに、下降液中にはさらに酸素同位体重成分が濃縮される。

【0027】

重成分濃度が減少し塔頂部に達した上昇ガスは、経路 33 を通して塔 3 から導出され、塔頂ガス 111 として上記導入経路 13 で第 3 塔フィードガス 108 と合流する。

【0028】

酸素同位体重成分が濃縮された濃縮物である第 3 塔 3 の塔底部液は、経路 30

を通して塔3から導出され、第3塔蒸発器10に導入され、ここで気化した後、酸素同位体重成分が濃縮した濃縮物である第3塔導出ガス109として蒸発器10から導出される。

蒸発器10から導出された第3塔導出ガス109は二分され、一方は経路31を通して塔3の下部に戻されて塔3内を上昇する上昇ガスとなり、他方は、経路32を通して酸素同位体重成分を濃縮した濃縮物である製品ガス110として回収される。

【0029】

ここで、第2塔、第3塔へのフィードガス104、108の量の設定について説明する。

第2塔フィードガス104の流量は、第2塔あるいは第3塔から装置外へ回収される製品（本実施形態例の場合は製品ガス110のみ）に同伴される目的成分の流量に対して、第2塔フィードガス104に同伴される目的成分の流量が十分な量になるように設定する。

詳しくは、 $\left[\text{第2塔あるいは第3塔から装置外へ回収される製品110中の目的成分の流量} \right] / \left[\text{第2塔フィードガス104に同伴される目的成分の流量} \right] = \left[\text{目的成分の収率} \right]$ とする時、この目的成分の収率が1%～10%以下になるように設定することが望ましい。

第2塔フィードガス104の量を小さくしすぎると（目的成分の収率を大きくしようとしすぎると）、第2塔および第3塔の蒸留性能が低下する。逆に、第2塔フィードガス104の量を大きくしすぎると、第1塔蒸発器6と第2塔凝縮器7の熱交換量の増大に対して蒸留性能はさほど向上しなくなる。

【0030】

また、第3塔フィードガス108の流量は、第3塔から装置外へ回収される製品（本実施形態例の場合は製品ガス110のみ）に同伴される目的成分の流量に対して、第3塔フィードガス108に同伴される目的成分の流量が十分な量になるように設定する。

詳しくは、 $\left[\text{第3塔から装置外へ回収される製品110に同伴される目的成分の流量} \right] / \left[\text{第3塔フィードガス108に同伴される目的成分の流量} \right] = \left[\text{目的} \right]$

成分の収率] が 1 % ~ 1 0 % 以下になるように設定することが望ましい。

第 3 塔フィードガス 1 0 8 の量を小さくしすぎると (目的成分の収率を大きくしようとしすぎると) 、第 3 塔の蒸留性能が低下する。また、第 3 塔フィードガス 1 0 8 の量を大きくしすぎると、第 2 塔蒸発器 8 と第 3 塔凝縮器 9 の熱交換量の増大に対して蒸留性能はさほど向上しなくなる。

【 0 0 3 1 】

次に上記各塔の運転制御方法を説明する。

ある一つの塔に着目した時、制御可能な部分は以下の 4 つである。

- ① 第 k 塔から第 k+1 塔へ供給されるガス配管にある弁。
- ② 第 k+1 塔から第 k 塔へ戻される液配管の弁。
- ③ 蒸発器の熱交換量 (温流体の流量、圧力)
- ④ 凝縮器の熱交換量 (冷流体の流量、圧力)

4 つを同時に調節するのは困難なので、基本的に各塔について①と③を固定し、装置の状態を見ながら②と④を調節する。

【 0 0 3 2 】

まず③蒸発器の熱交換量 (温流体の流量、圧力) の調節は次のように行う。

蒸発器の熱交換量は、各塔の蒸気負荷が適当な値 (計画値) になるように予め調節し設定して以降、制御はしない。蒸留塔内の密度補正空塔速度は、 $0.5 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$ 以上、 $3.0 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$ 以下、好ましくは $0.7 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$ 以上、 $2.2 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$ 以下になるように設定するのが好ましい。

【 0 0 3 3 】

次に、①第 k 塔から第 k+1 塔へ供給されるガス配管 (経路 1 2、1 3) にある弁 1 2 v、1 3 v を調節する。各塔の塔頂圧力がほぼ等しい場合、第 k 塔塔底圧力は第 k+1 塔塔頂圧力よりも、第 k 塔の圧力損失分だけ高くなる。したがって、配管の途中に弁を設けた上で、第 k 塔から第 k+1 塔へ供給されるガスの流量を検出し、規定された流量に制御する。この流量は、厳密なものではないので、一旦丁度良い流量 (計画値にほぼ等しい値) になったら、弁の開度は調節しない。各塔の圧力が一定であれば、この流量はほとんど変化しない。

【 0 0 3 4 】

ついで、④凝縮器の熱交換量（冷流体の流量、圧力）を設定する。これは各蒸留塔内の圧力が一定になるように調節する。蒸発器の熱交換量③は固定されているので、凝縮器の熱交換量④が小さいと、蒸留塔の圧力は上がり続けてしまう。

また、逆に凝縮器の熱交換量④が大きいと蒸留塔の圧力は下がり続ける。いったん最適値に調節しても、天候によって装置の侵入熱が変化し、圧力は変動する。

したがって、各塔の圧力を常に検出しながら凝縮器の熱交換量④を制御する必要がある。

【 0 0 3 5 】

ついで②第k+1塔から第k塔へ戻される液配管（経路 1 4、1 5）の弁 1 4 v、1 5 v を調節する。

調節弁 1 4 v、1 5 v は、所定の液ヘッドがえられる範囲で比較的塔頂の凝縮器に近い位置に設置する。これは、配管内の液ホールドアップを小さくするためである。

この開度は、各蒸留塔の塔底の液面（蒸発器の液面）を検出しながら調節する。

この開度が小さすぎて、第k+1塔から第k塔への戻りが小さくなった場合、①ガス配管の弁 1 2 v、1 3 v が固定されているので、第k+1塔～第n塔までのプロセス流体のホールドアップがどんどん増えていく。各塔の圧力は④凝縮器 5、7、9 によって一定に保たれているので、ホールドアップの増加は、蒸留塔塔底の液面上昇につながる。

逆に、第k+1塔から第k塔への戻りが大きくなった場合、蒸留塔塔底の液面は低下する。

したがって、②液配管の弁は各蒸留塔塔底の液面高さが一定になるように制御しなければならない。

なお、調節弁 1 4 v、1 5 v は、所定の液ヘッドがえられる範囲で比較的塔頂の凝縮器に近い位置に設置するが、制御の容易さ、确实さを考慮すると蒸発器に近い位置に設けるのが良い。

【 0 0 3 6 】

本実施形態例の蒸留装置は、第1塔蒸発器6の出口と第2塔凝縮器7の入口とが第1の導入経路12で接続され、第2塔蒸発器8の出口と第3塔凝縮器9の入口とが第2の導入経路13で接続され、かつ第2塔凝縮器7の出口と第1塔蒸発器6の入口とが第1の返送経路14で接続され、第3塔凝縮器9の出口と第2塔蒸発器8の入口とが第2の返送経路15で接続されているので、凝縮器7、9を経た凝縮液のうち一部を返送液107、112として蒸発器6、8に戻すことができる。

このため、塔2、3内の圧力を従来に比べ低く設定することができ、各塔内における同位体各成分間の蒸気圧比を大きくし、蒸留性能を向上させることができる。これにより、各塔の充填高さを低くすることができ、液のホールドアップ量を少なくでき、起動時間の短縮を図ることができる。

また上記理由により、酸素同位体重成分を高濃度で含有する製品を効率良く得ることができる。

【0037】

また、従来の装置（図19）では、前段側の塔から後段側の塔への供給経路の全部が液で満たされているのに対して、本実施形態例の装置では返送経路のうち、これら塔の圧力差に相当する液ヘッド分に応じた部分のみが液で満たされる。即ち、後段側の塔から前段側の塔への返送経路のうち、凝縮器7、9にて液化された返送液107、112を前段側の塔に返送するために必要なこれら塔の圧力差に相当する液ヘッド分に応じた経路部分のみが液で満たされる。

このため、液ホールドアップ量が小さくなり、いっそうの装置の起動時間の短縮が可能となる。

特に蒸留塔の塔径が小さい場合には、返送経路の配管径が相対的に大きくなるので、本実施形態例の装置と従来装置との間の液ホールドアップの差が大きくなると考えられ、起動時間の点で、本発明装置の優位性がさらに明確となると考えられる。

【0038】

また、塔1、2、3に規則充填物（自己分配促進型充填物あるいは非分配促進型充填物）を用いることによって、塔内の圧力損失を小さくし、塔内圧を低く設

定することができる。このため、各成分間の蒸気圧比を大きくし蒸留効率を高めるとともに、液ホールドアップ量を小さくし、起動時間のさらなる短縮を図ることができる。またこれに伴って運転コスト削減が可能となる。

さらには、自己分配型規則充填物の使用により、塔内における気液接触効率を高め、同位体濃縮効率を高めることができる。

【0039】

上記実施形態例の蒸留装置では、第2塔凝縮器7の出口と第1塔蒸発器6の入口とが第1の返送経路14で接続され、第3塔凝縮器9の出口と第2塔蒸発器8の入口とが第2の返送経路15で接続されているが、本発明の蒸留装置はこれに限らず、第1の返送経路を、符号14a（破線で示す経路）で示すように第2塔凝縮器7の出口と第1塔1の中間部とを接続するものとし、かつ第2の返送経路を、符号15a（破線で示す経路）で示すように第3塔凝縮器9の出口と第2塔2の中間部とを接続するものとしてもよい。

また、塔1、2、3としては、上記充填物を用いた充填塔に限らず、濡れ壁塔を用いることもできる。

【0040】

図7は、本発明の蒸留装置の第2の実施形態例を示すもので、ここに示す蒸留装置は、以下の点で図1に示す蒸留装置と異なる。

(1) 第1塔蒸発器6の出口と、第2塔2の塔頂部とが、第1の導入経路35によって直接接続され、第1塔蒸発器6を経た第2塔フィードガス104'を、直接、第2塔2の塔頂部に供給できるようになっている。

(2) 第2塔蒸発器8の出口と、第3塔3の塔頂部とが、第2の導入経路36によって直接接続され、第2塔蒸発器8を経た第3塔フィードガス108'を、直接、第3塔3の塔頂部に供給できるようになっている。

(3) 第2塔凝縮器7の出口と、第1塔1の塔底部とが、第1の返送経路37によって接続され、第2塔凝縮器7からの返送液107'を第1塔1の塔底部に返送することができるようになっている。

(4) 第3塔凝縮器9の出口と、第2塔2の塔底部とが、第2の返送経路38によって接続され、第3塔凝縮器9からの返送液112'を第2塔2の塔底部に返

送することができるようになっている。

なお、図中破線で示す経路は後記するごとく本実施形態例の装置の変形例である。

【0041】

以下、図7の装置を用いた場合を例として、本発明の酸素同位体重成分の濃縮方法の第2の実施形態例を説明する。

経路20を通して、第1塔フィード101として第1塔1内に供給された原料酸素ガスは、塔1内における気液接触によって蒸留される。

第1塔1内で酸素同位体重成分が濃縮された塔底部液は、経路23'を通して第1塔蒸発器6に導入され、ここで気化し第1塔導出ガス102'として蒸発器6から導出される。

導出ガス102'の一部は経路39を通して第1塔1の下部に戻され、他部は、第1の導入経路35を通して第2塔フィード104'として第2塔2の塔頂部に直接、導入される。

第2塔2内において同位体重成分濃度が減少して塔頂部に達した上昇ガスは、塔頂ガス106として経路28'を通して第2塔2から導出され、第2塔凝縮器7において凝縮した後、二分され、一方は経路25'を通して第2塔2上部に還流液として戻され、他方は第1の返送経路37を通して第1の返送液107'として第1塔1の塔底部に返送される。

【0042】

第2塔2内で酸素同位体重成分が濃縮された塔底部液は、経路26'を通して第2塔蒸発器8に導入され、ここで気化し第2塔導出ガス105'として蒸発器8から導出される。

導出ガス105'の一部は経路40を通して第2塔2の下部に戻され、他部は第2の導入経路36を通して第3塔フィード108'として第3塔3の塔頂部に直接、導入される。

第3塔3内において同位体重成分濃度が減少して塔頂部に達した上昇ガスは、塔頂ガス111として経路33'を通して第3塔3から導出され、第3塔凝縮器9において凝縮した後、二分され、一方は経路29'を通して第3塔3上部に該

塔の還流液として導入され、他方は第2の返送経路38を通して第2の返送液112'として第2塔2の塔底部に返送される。

【0043】

本実施形態例の蒸留装置では、凝縮器7、9を経た凝縮液のうち一部を返送液107'、112'として該凝縮液自身の重量（ヘッド圧）で前段の塔に戻すことができる。このため、液ポンプを使用する従来法に比して液量は少なくて済み、上述の第1の実施形態例の装置と同様に、起動時間の短縮を図ることができる。また塔底部と塔頂部を接続した形とすることにより少ない全塔長により酸素同位体重成分を高濃度で含有する製品を効率良く得ることができる。

【0044】

なお、上記実施形態例の蒸留装置では、第1塔蒸発器6の出口と第2塔2の塔頂部とが第1の導入経路35によって接続され、第2塔蒸発器8の出口と第3塔3の塔頂部とが第2の導入経路36によって接続され、さらに、第2塔凝縮器7の出口と第1塔1の塔底部とが第1の返送経路37によって接続され、第3塔凝縮器9の出口と第2塔2の塔底部とが第2の返送経路38によって接続されているが、本発明の蒸留装置はこれに限定されない。

例えば、符号35a、36a（破線で示す経路）で示すように、第1および第2の導入経路を、塔2、3の塔頂部でなく中間部に接続することもできるし、符号37a、38aで示すように、第1および第2の返送経路を、塔1、2の塔底部でなく塔1、2の中間部に接続することもできる。

【0045】

図8は、本発明の蒸留装置の第3の実施形態例を示すもので、ここに示す蒸留装置は、以下の点で図7に示す蒸留装置と異なる。

- (1) 第2塔2の塔頂ガス106を第2塔凝縮器7に導く経路28'と、第1塔1の塔底部とが、第1の返送経路37'によって接続され、第2塔2の塔頂ガス106の一部を、第1塔1の塔底部に返送することができるようになっている。
- (2) 第3塔3の塔頂ガス111を第3塔凝縮器9に導く経路33'と、第2塔2の塔底部とが、第2の返送経路38'によって接続され、第3塔3の塔頂ガス111の一部を、第2塔2の塔底部に返送することができるようになっている。

(3) 第1および第2の返送経路37'、38'にそれぞれブロワ41、42が設けられている。

ブロワ41、42としては、常温圧縮機、低温圧縮機を用いることができるが、常温圧縮機を用いる場合は、図9に示すように、返送経路37'、38'に熱交換器41a、42aを介在させる必要がある。

【0046】

以下、図8の装置を用いた場合を例として、本発明の酸素同位体重量成分の濃縮方法の第3の実施形態例を説明する。

第2塔2内において同位体重量成分濃度が減少して塔頂部に達した上昇ガスは、塔頂ガス106として経路28'を通して第2塔2から導出された後、二分される。

二分された塔頂ガス106のうち一方は第2塔凝縮器7において凝縮した後、第2塔2上部に戻されて該塔の還流液となり、他方は第1の返送経路37'を通してブロワ41に至り、ここで昇圧されて第1の返送液107"として第1塔1塔底部に返送される。

同様に、第3塔3の塔頂部から導出された塔頂ガス111は、経路33'を通して第3塔3から導出された後、二分され、一方は第3塔凝縮器9において凝縮した後、第3塔3上部に戻されて該塔の還流液となり、他方は第2の返送経路38'を通してブロワ42に至り、ここで昇圧されて第2の返送液112"として第2塔2塔底部に返送される。

【0047】

本実施形態例の蒸留装置では、各経路ともガス状で供給され液状ではないので上述の第1の実施形態例の装置と同様に、起動時間の短縮を図ることができる。また塔底部と塔頂部、塔頂部と塔底部をそれぞれ連結するので、酸素同位体重量成分を高濃度で含有する製品を得ることができる。

なお、本実施形態例の蒸留装置では、第1塔蒸発器6の出口と第2塔2の塔頂部とが第1の導入経路35によって接続され、第2塔蒸発器8の出口と第3塔3の塔頂部とが第2の導入経路36によって接続され、さらに、第2塔凝縮器7の入口と第1塔1の塔底部とが第1の返送経路37'によって接続され、第3塔凝

縮器 9 の入口と第 2 塔 2 の塔底部とが第 2 の返送経路 38' によって接続されているが、本発明の蒸留装置はこれに限定されない。

例えば、符号 35 a、36 a (破線で示す経路) で示すように、第 1 および第 2 の導入経路を、塔 2、3 の塔頂部でなく中間部に接続することもできるし、符号 37' a、38' a で示すように、第 1 および第 2 の返送経路を、塔 1、2 の塔底部でなく塔 1、2 の中間部に接続することもできる。

【0048】

上記各実施形態例では、3 つの蒸留塔を有する蒸留装置を示したが、本発明の蒸留装置において、蒸留塔の数はこれに限定されない。

図 10 に示す蒸留装置は、蒸留塔の数が n 本とされた蒸留装置である。

ここに示す蒸留装置は、 n 本の蒸留塔 $A_1 \sim A_n$ と、これら塔 $A_1 \sim A_n$ の塔頂部付近に設けられた凝縮器 $B_1 \sim B_n$ と、塔 $A_1 \sim A_n$ の塔底部付近に設けられた蒸発器 $C_1 \sim C_n$ と、第 k 塔 ($1 \leq k \leq (n-1)$) の塔底部付近に設けた第 k 塔蒸発器 C_k の出口と第 $(k+1)$ 塔の塔頂部とを接続する導入経路 $D_1 \sim D_{n-1}$ と、第 $(k+1)$ 塔の第 $(k+1)$ 塔凝縮器 B_{k+1} 出口と第 k 塔の塔底部とを接続する返送経路 $E_1 \sim E_{n-1}$ を備えている。

蒸留塔の数 n は、例えば $2 \sim 100$ とすることができる。

【0049】

また上記図 10 に示す蒸留装置における蒸発器と凝縮器の熱媒体流体の循環系統を図 11 に示す。

図 11 に示すように、各凝縮器 $B_1 \sim B_n$ と、蒸発器 $C_1 \sim C_n$ とは、熱媒体流体用の循環経路 81 によって接続されている。

この循環経路 81 では、貯留槽 82 内の熱媒体流体が導出され、ポンプ 83、過冷却器 84 の第 1 流路を経て凝縮器 $B_1 \sim B_n$ に導入された後、過冷却器 84 の第 2 流路を経て熱交換器 85 の第 1 流路に至り、次いでブローア 86、熱交換器 85 の第 2 流路を経て蒸発器 $C_1 \sim C_n$ に導入された後、貯留槽 82 に戻されるようになっている。なお過冷却器 84 は、熱媒体流体が凝縮器に達する以前に気化するのを防ぐために熱媒体流体を冷却するためのものである。

【0050】

本発明では、同様に、図 1 に示す第 1 の実施形態例の蒸留装置や、図 7 に示す第 2 の、そして図 8 に示す第 3 の実施形態例の蒸留装置においても、蒸留塔の数は図示例に限定されず、任意に設定することができる。

【 0 0 5 1 】

また、上記各実施形態例では、原料酸素を低温蒸留することによって酸素同位体重成分を濃縮する方法を示したが、本発明はこれに限らず、原料として水を用い、これを上記各実施形態例の蒸留装置によって蒸留し、酸素同位体重成分を含む重酸素水 H_2^{17}O 、 H_2^{18}O 、 D_2^{17}O 、 D_2^{18}O 、 DH^{17}O および DH^{18}O のうち少なくとも一種を濃縮することにより重酸素水を製造することもできる。

この場合においても、上述の第 1 の実施形態例と同様に、起動時間の短縮を図ることができる。また酸素同位体重成分を高濃度で含有する重酸素水製品を得ることができる。

【 0 0 5 2 】

図 1 2 および図 1 3 は、本発明の重酸素水の製造方法の他の実施形態例を実施するために用いられる蒸留装置を示すもので、ここに示す装置は、複数の蒸留塔 $A_1 \sim A_n$ を備えた酸素蒸留用の酸素蒸留塔ユニット F_1 と、複数の蒸留塔 $A'_1 \sim A'_n$ を備えた水蒸留用の水蒸留塔ユニット F_2 と、これらユニット F_1 、 F_2 間に設けられた水素添加反応装置 3 0 0 A を備えている。

蒸留塔ユニット F_1 、 F_2 には、図 1 0 に示す蒸留装置の構成を採用することができる。

【 0 0 5 3 】

図 1 3 に示す水素添加反応装置 3 0 0 A は、酸素蒸留塔ユニット F_1 を経た濃縮物（酸素ガス）を一時貯留するバッファタンク 3 4 1 と、バッファタンク 3 4 1 内の酸素ガスを導く経路 3 4 2 と、図示せぬ供給源から供給された水素（または重水素）を導く経路 3 4 3 と、これら経路 3 4 2、3 4 3 から供給された酸素と水素を反応させる燃焼室 3 4 4 と、制御器 3 4 5 とを有する燃焼器 3 0 0 を主たる構成要素とするものである。

【 0 0 5 4 】

燃焼室 3 4 4 は、燃焼室 3 4 4 内に供給される酸素と水素とを混合し燃焼する

バーナ 3 4 4 a と、該酸素・水素混合ガスに着火するヒータ 3 4 4 b と、反応生成物（水蒸気）を冷却する冷却コイル 3 4 4 c を備えている。また符号 3 4 4 d は燃焼室 3 4 4 内の反応生成物（水）を弁を介して取り出す取出口を示す。

【 0 0 5 5 】

制御器 3 4 5 は、予め設定された値による信号と、経路 3 4 2 に設けられた酸素流量検出器 3 4 2 a によって検出された酸素ガス流量に基づく信号により流量調節弁 3 4 2 b を調節し、経路 3 4 2 を通して燃焼室 3 4 4 内に供給される酸素ガスの供給量を調節することができるようになっている。

また、制御器 3 4 5 は、予め設定された値による信号と、経路 3 4 3 に設けられた水素流量検出器 3 4 3 a によって検出された水素流量に基づく信号により流量調節弁 3 4 3 b を調節し、経路 3 4 3 を通して燃焼室 3 4 4 内に供給される水素の供給量を調節することができるようになっている。

なお、符号 3 4 2 c、3 4 3 c は逆止弁、符号 3 4 2 d、3 4 3 d は逆火防止器、符号 3 4 4 e は燃焼室 3 4 4 内のごく少量の未反応ガスを弁を介して排出する排出用経路を示す。

【 0 0 5 6 】

以下、上記蒸留装置を用いた場合を例として、本発明の重酸素水の製造方法の一実施形態例を説明する。

原料酸素を、酸素蒸留塔ユニット F_1 に供給し、酸素同位体重成分を濃縮した濃縮物である中間製品ガス 1 1 0' を得る。

この中間製品ガス 1 1 0'（酸素ガス）を、経路 4 4、調節弁 4 4 a を通して水素添加反応装置 3 0 0 A の燃焼器 3 0 0 に導入する。

燃焼器 3 0 0 に導入された酸素ガスは、バッファタンク 3 4 1 を経て経路 3 4 2 を通しバーナ 3 4 4 a を介して燃焼室 3 4 4 内に導入される。

同時に、図示せぬ供給源から供給された水素を経路 3 4 3 を通しバーナー 3 4 4 a を介して燃焼室 3 4 4 内に供給する。

【 0 0 5 7 】

この際、制御器 3 4 5 によって、設定値による信号および酸素流量検出器 3 4 2 a によって検出された酸素ガス流量に基づくフィードバック信号により演算が

行われ、その結果の信号により流量調節弁 3 4 2 b が調節されるとともに、同様に、制御器 3 4 5 からの設定値による信号と水素流量検出器 3 4 3 a によって検出された水素流量に基づくフィードバック信号により演算が行われ、その結果の信号により流量調節弁 3 4 3 b が調節され、水の生成のための化学量論量に近い量の上記酸素と水素がバーナー 3 4 4 a を介して燃焼室 3 4 4 内に供給される。

【 0 0 5 8 】

燃焼室 3 4 4 に供給される酸素および水素は上記の如くフィードバック制御により常に化学量論量に限りなく近い流量に制御されるが、それでも過剰分として導入されたガスは弁を介して排出用経路 3 4 4 e から定期的に排出し、このガスが燃焼室 3 4 4 内に溜まるのを防ぐ。

この排ガス量をさらに減らすために、フィードフォワード制御を併用するなど、より厳密な制御手段を採用することが好ましい。

【 0 0 5 9 】

燃焼室 3 4 4 内に供給された上記酸素と水素は、バーナ 3 4 4 a において混合された後、燃焼室 3 4 4 内に噴出され、ヒータ 3 4 4 b により着火し、これらが反応することにより水が生成する。

生成した水は、大部分が冷却コイル 3 4 4 c による冷却によって凝縮した後、取出口 3 4 4 d を通して燃焼室 3 4 4 外に導出され、生成水 1 1 3 として経路 4 5 を経て水蒸留塔ユニット F_2 に導入される。

この生成水 1 1 3 は、酸素同位体重成分の濃縮物である中間製品ガス 1 1 0' を原料として得られたものであるため、酸素同位体重成分を多く含む重酸素水となる。

【 0 0 6 0 】

水蒸留塔ユニット F_2 は、酸素蒸留塔ユニット F_1 と同様の構成とされているため、蒸留塔ユニット F_2 内においては、ユニット F_1 における酸素同位体重成分の濃縮過程と同様に、生成水 1 1 3 中の重成分、すなわち $H_2^{17}O$ 、 $H_2^{18}O$ 、 $D_2^{17}O$ 、 $D_2^{18}O$ 、 $DH^{17}O$ 、 $DH^{18}O$ が濃縮され、製品重酸素水 1 1 4 として回収される

【 0 0 6 1 】

本実施形態例の蒸留装置では、上述の第 1 の実施形態例と同様に、起動時間の短縮を図ることができる。また酸素同位体重成分を高濃度で含有する重酸素水製品を得ることができる。

【0062】

図 1 4 は、本発明の蒸留装置の他の実施形態例を示すもので、ここに示す装置は、 n 本の蒸留塔 $A_1 \sim A_n$ と、これら塔 $A_1 \sim A_n$ の塔頂部付近に設けられた凝縮器 $B_1 \sim B_n$ と、塔 $A_1 \sim A_n$ の塔底部付近に設けられた蒸発器 $C_1 \sim C_n$ と、第 k 塔 ($1 \leq k \leq (n-1)$) の塔底部付近に設けた第 k 塔蒸発器 C_k の出口と第 $(k+1)$ 塔の塔頂部とを接続する導入経路 $D_1 \sim D_{n-1}$ と、第 $(k+1)$ 塔の第 $(k+1)$ 塔凝縮器 B_{k+1} 出口と第 k 塔の塔底部とを接続する返送経路 $E_1 \sim E_{n-1}$ と、同位体スクランブラー 4 7 を備えている。

【0063】

同位体スクランブラー 4 7 は、塔 $A_1 \sim A_h$ によって濃縮した酸素同位体濃縮物を、酸素同位体スクランブリングによってさらに濃縮するためのもので、入口側が取出経路 4 8 を介して第 h 塔 A_h 下部に接続され、出口側が、第 h 塔 A_h に対し後段側に隣接する第 i 塔 A_i 中間部に返送経路 4 9 を介して接続されている。

【0064】

同位体スクランブラー 4 7 としては、同位体交換反応触媒を用いるものの他に、酸素分子をいったん別の化合物とし、その後これを分解し酸素分子を得るものがある。

同位体スクランブラー 4 7 として、前者のものを用いた場合、酸素同位体重成分濃縮物である塔 A_h の塔底部ガスを同位体交換反応触媒に接触させることで、濃縮物中において、後述する同位体交換反応を促進し、これにより濃縮物中の重成分酸素分子の濃度をさらに高めることができる。

【0065】

この場合、同位体スクランブラー 4 7 は、触媒筒（図示略）と、その内部に充填された同位体交換反応触媒を備えている。

この同位体交換反応触媒としては、例えば W 、 Ta 、 Pd 、 Rh 、 Pt 、および Au からなる群より選択された 1 種または 2 種以上を含むものを使用すること

ができる。

また同位体交換反応触媒としては上記の他、Ti 酸化物、Zr 酸化物、Cr 酸化物、Mn 酸化物、Fe 酸化物、Co 酸化物、Ni 酸化物、Cu 酸化物、Al 酸化物、Si 酸化物、Sn 酸化物、およびV 酸化物からなる群より選択された1種または2種以上を含むものを使用することもできる。また、上記金属単体の触媒と上記金属酸化物触媒とをそれぞれ1種または複数種混在させたものを用いることも出来る。

【0066】

同位体スクランブラー47として、後者のものを用いた場合は、酸素同位体重成分濃縮物である塔A_hの塔底部ガスをいったん別の化合物（例えば水）に変換し、その後これを分解し酸素分子を得ることによって濃縮物中の重成分酸素分子の濃度をさらに高める。この方法を採用した同位体スクランブラー47の例を図15に示す。

【0067】

図15において、同位体スクランブラー47は主にアルゴン循環ブロワー87と、酸化反応触媒を充填した触媒筒88と、電気分解装置89と、酸素精製装置90からなる。

触媒筒88に充填された酸化反応触媒としては、例えばPd、Pt、Rh、Ru、Ni、CuおよびAuからなる群より選択された1種または2種以上を含むものを使用することができる。さらにPd、Pt、Rh、Ru等を、Al 酸化物、Si 酸化物、Ti 酸化物、Zr 酸化物、Cr 酸化物、V 酸化物、Co 酸化物、Mn 酸化物等に担持させた触媒からなる群より選択された1種または2種以上を含むものを使用することもできる。

【0068】

アルゴン循環ブロワー87は、触媒筒88、冷却器91、チラー92を備えたアルゴン循環系統内のガスを循環させるために設けられている。この循環系統内は酸素および水素が共存するため、この循環系統には、爆発範囲を考慮して、該系統内のガスを希釈するアルゴンを供給するアルゴン補給ライン98が接続されている。

なおこの循環系統には、チラー 92 の出口における水素濃度を約 2 % 程度に保つために水素ガス補給ライン 97 が設けられている。

【0069】

次に、上記装置を用いた場合を例として、本発明の酸素同位体の濃縮方法の一実施形態を説明する。

経路 20 を通してフィード 101 を第 1 塔 A_1 に供給し、以下、塔 A_h に至る間に上述の過程にしたがって酸素同位体重成分を濃縮し、濃縮物である塔 A_h の塔底部液を得る。

次いで、この塔底部液を、経路 48 を通して導出ガス 115 として同位体スクランブラー 47 に導入する。

【0070】

経路 48 からアルゴン循環ブロー 87 の吸入側に供給された酸素ガスは、アルゴンおよび水素と混合され、ブロー 87 により約 80 ~ 100 kPa (ゲージ) まで昇圧され触媒筒 88 へ導入される。また前記ブロー 87 の出口で極微量の水素 (後記する触媒筒 95 で反応除去した分) をライン 97 から補給する。触媒筒 88 内で水素と酸素が反応 ($2H_2 + O_2 \rightarrow 2H_2O$) し水が生成し、触媒筒 88 出口の組成は水素約 2 %、水蒸気約 0.5 %、アルゴン約 97.5 % となる。

【0071】

この混合ガスは冷却器 91 およびチラー 92 により冷却され、水が貯槽 93 に分離される。この水は電気分解装置 89 内に設けられたポンプにより電解槽 94 (圧力 400 kPa ゲージ) へ送られて電気分解され、再び、微量の酸素を含んだ水素ガスと、微量の水素を含んだ酸素ガスに分離される。前者の水素ガスは上記アルゴン循環系統に回収される。後者の酸素ガスは触媒筒 95、吸着器 96 を備えた酸素精製装置 90 により微量の水素、水などが除去され、経路 49 を通して導出され、酸素蒸留塔へ戻される。

吸着器 96 の再生ガスには、酸素同位体重成分が濃縮された酸素ガスのロスを防ぐため、別途超高純度酸素ガス (蒸留塔第 1 塔フィードガスと同一仕様のガス) を用いる。

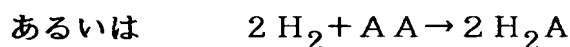
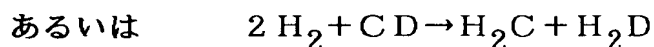
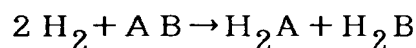
なお、同位体スクランブラー戻り酸素ガス 116 の流量は、該酸素ガスが戻される蒸留塔内の上昇ガス量に比べて極めて小さいため、常温のまま蒸留塔内に戻しても蒸留性能にはほとんど影響しない。

【0072】

同位体スクランブラー 47 の装置全体でみると、ガスの出口は、精製された同位体スクランブラー戻りガス 116 のライン 49 と、吸着器 96 の再生のために別途供給された超高純度酸素ガスの放出口しかないため、その他のガスは装置内を循環しており、ガスのロスはほとんどない。したがって、水素ガス、アルゴンガス共に補給ラインから補給される量は極微量である。

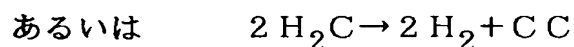
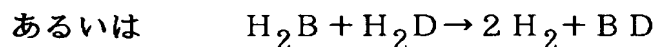
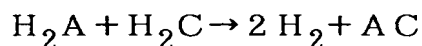
【0073】

同位体スクランブラー 47 の触媒筒 88 内では、酸化反応触媒により水素と酸素が反応し、水が生成される。例えば A、B、C、D が ^{16}O 、 ^{17}O 、 ^{18}O のうちいずれかの同位体原子であるとする、



などの反応により、酸素分子を構成していた原子が水の別々の分子に別れる。ここで得られた反応物（水分子）中の各酸素同位体成分の存在比は、導出ガス 115 中の各同位体成分の存在比によって決まることになる。

さらに同位体スクランブラー 47 の電気分解装置 89 内では、電気分解により水分子が酸素分子と水素分子に分解される。同様に A、B、C、D が ^{16}O 、 ^{17}O 、 ^{18}O のうちいずれかの同位体原子であるとする、



などの反応により、水分子が酸素分子と水素分子に分解される。ここで得られた酸素分子を構成する酸素原子の組み合わせは、水分子内に存在する酸素同位体成分の存在比によって確率的に決まる。

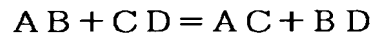
なお、上記のように複数種の同位体分子が存在する時、各分子がその構成する

相手の原子をランダムに変えることを同位体スクランブリングと言ひ、それを行なう装置を同位体スクランブラーという。

【0074】

上記同位体スクランブラー47として同位体交換反応触媒を用いる方法を用いた場合には、同位体スクランブラー47の触媒筒内において、同位体交換反応触媒により同位体交換反応が行われる。同位体交換反応は、十分に加熱された触媒表面上で、2原子分子における相手原子を他の原子と交換する反応である。

即ち、同位体交換反応とは、例えばA、B、C、Dが ^{16}O 、 ^{17}O 、 ^{18}O のうちいずれかの同位体原子であるとする、



あるいは $AB + CD = AD + BC$

となる反応である。

ある同位体原子に着目すると、十分に時間が経過した後では、分子として相手になる同位体原子は、同位体交換反応を始める前の各同位体成分の存在比によって確率的に決まることになる。

従って、同位体スクランブラー47による同位体交換反応によって得られた反応物（酸素同位体分子）中の各同位体成分の存在比は、導出ガス115中の各同位体成分の存在比によって決まることになる。

【0075】

すなわち、例えば導出ガス115中に $^{16}\text{O}^{16}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ の成分があり、それぞれのモル分率を Y_{11} 、 Y_{12} 、 Y_{13} 、とすると、上記いずれの方法を用いても同位体スクランブラー47により、酸素分子を構成する酸素原子の組み合わせが、各同位体成分の存在確率によりランダムに変化するため、同位体スクランブリング後の各成分の濃度は、

$$^{16}\text{O}^{16}\text{O} : (Y_{11} + Y_{12}/2 + Y_{13}/2)^2 \quad \dots(i)$$

$$^{16}\text{O}^{17}\text{O} : (Y_{11} + Y_{12}/2 + Y_{13}/2) Y_{12} \quad \dots(ii)$$

$$^{16}\text{O}^{18}\text{O} : (Y_{11} + Y_{12}/2 + Y_{13}/2) Y_{13} \quad \dots(iii)$$

$$^{17}\text{O}^{17}\text{O} : Y_{12}^2/4 \quad \dots(iv)$$

$$^{17}\text{O}^{18}\text{O} : Y_{12}Y_{13}/2 \quad \dots(v)$$

$$^{18}\text{O}^{18}\text{O} : Y_{13}^2/4 \quad \dots(\text{vi})$$

となる。

【0076】

この $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ に含まれる ^{16}O の一部が $^{16}\text{O}^{16}\text{O}$ となるのに伴って、重成分(^{17}O および ^{18}O)のみからなる酸素分子($^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$ 、以下、重成分酸素分子という)の濃度が高められる。

【0077】

同位体スクランブラー47によって重成分酸素分子の濃度が高められた反応物は、同位体スクランブラー戻りガス116として経路49を通して塔 A_i に供給され、以下、塔 $A_i \sim A_n$ を経る。重成分酸素分子は高沸点であり濃縮しやすいため、この過程において、酸素同位体重成分の濃度がさらに高められる。

【0078】

上記実施形態例の酸素同位体の濃縮方法では、上述の第1の実施形態例と同様に、起動時間の短縮を図ることができる。

また、塔 $A_1 \sim A_n$ によって得られた酸素同位体重成分濃縮物を同位体スクランブラー47に供給し、同位体スクランブラー47における同位体スクランブリングによって、濃縮物中の重成分酸素分子($^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ 、および $^{17}\text{O}^{17}\text{O}$)濃度を高め、この濃縮物を塔 $A_i \sim A_n$ に供給し、酸素同位体重成分の濃度をさらに高めるので、酸素同位体重成分を高濃度で含有する製品を得ることができる。

【0079】

なお、図示例の装置では、同位体スクランブラー47の出口側経路49が、第 i 塔 A_i に接続された構成とした。このように、同位体スクランブラー47の出口側経路49が接続される塔は、入口側経路48が接続される第 h 塔 A_h よりも下流側(後段側)のものであることが望ましいが、本発明ではこれに限らず、出口側経路49が接続される塔が、入口側経路48が接続される塔、またはこの塔よりも上流側(前段側)のものであってもよい。

【0080】

すなわち、同位体スクランブラー47はカスケードに構成した「複数の蒸留塔

から構成される装置」のどの部分にも組み込むことが可能である。例えば、第k塔（蒸留塔、コンデンサー、リボイラー、配管などを含む）の任意の場所からガスを抜き出し、同位体スクランブラーで処理し、第j塔（蒸留塔、コンデンサー、リボイラー、配管などを含む）の任意の場所に戻すことも可能である。ここで、kとjの大小関係は自由で、また、k=jの場合もあり得る。ただし、同位体スクランブリングを効果的に行うために、蒸留装置からガスを抜き出す位置は、 ^{16}O ^{18}O が最も濃縮されている位置が望ましく、また、同位体スクランブリングの後に蒸留塔に戻す位置は、抜き出す位置における ^{18}O ^{18}O の濃度よりも、同位体スクランブリング後のガスの ^{18}O ^{18}O の濃度の方が大きいので、抜き出した場所よりも後段（ ^{18}O ^{18}O がより濃縮された位置）であることが望ましい

【0081】

また、本発明では、上記最終塔 A_n から導出された酸素を、前記水素添加反応装置300Aに供給して水に変換することによって、重酸素水を得ることもできる。

【0082】

次に、上記各蒸留装置を用いて酸素同位体重成分の濃縮を行う場合についてコンピュータシミュレーションを行った結果について説明する。

本発明の蒸留塔の設計に採用した蒸留理論およびこのシミュレーションに採用した蒸留理論は、物質移動に関する速度論的モデルを用いており、いわゆるH. E. T. P (Height Equivalent to a Theoretical Plate) あるいは平衡段モデルは用いていない。

【0083】

この速度論的モデルを用いた蒸留理論において、質量流束 N は、拡散流束 J と対流項 ρv を用いて次のように表される。

$$N = J_{GS} + \rho_{GS} v_{GS} \omega_{GS}$$

また、物質移動に関する相関式として次のものを掲げることができる。

$$Sh_{GS} (J_{GS}/N) = A_1 Re_G^{A2} \cdot Sc_{GS}^{A3}$$

ここで、 Sh 、 Re 、 Sc は次式でそれぞれ定義される。

$$Sh_{GS} = Nd / (\rho_{GS} D_{GS} \Delta \omega_{GS})$$

$$Re_G = \rho_G U_G d / \mu_G$$

$$Sc_{GS} = \mu_{GS} / (\rho_{GS} D_{GS})$$

N : 質量流束 [kg/($\text{m}^2 \cdot \text{s}$)]

J : 拡散流束 [kg/($\text{m}^2 \cdot \text{s}$)]

d : 相当直径 [m]

D : 拡散係数 [m^2/s]

ρ : 密度 [kg/ m^3]

v : 速度 [m/s]

ω : 濃度 [kg/kg]

Sh : シャーウッド数 [-]

Re : レイノルズ数 [-]

Sc : シュミット数 [-]

添え字G : 気相

添え字S : 気液界面

【0084】

この速度論的なモデルの良さは、多成分系における中間成分の物質移動を正確に予測できること、平衡段モデルによって計算を行った場合に起こるマーフリー効率やH.E.T.Pが負の値をとるような非現実的な結果とならないことなどにある。

上記モデルについては、J.A.Wesselingh: "Non-equilibrium modelling of distillation" IChemE Distillation and Absorption '97, vol.1, pp.1-21 (1997)に詳しく記載されている。

【0085】

[実施例 1]

上記モデルを用いて、図 1 に示す蒸留装置を用いて酸素同位体の濃縮を行う場合のシミュレーションを行った結果を、表 2 に示す。なお装置仕様を表 1 に示す。

【0086】

[従来例 1]

図 1 9 に示す従来の蒸留装置を用いて酸素同位体の濃縮を行う場合のシミュレーションを行った結果を表 2 に併せて示す。

この従来装置は、第 1 塔ないし第 3 塔の塔径、充填高さを実施例 1 の装置と同じ値と想定した。またフィード量、製品量、還流比なども実施例 1 の場合と同様の値とした。

【 0 0 8 7 】

【表 1】

	第 1 塔	第 2 塔	第 3 塔
充てん高さ [m]	150	150	150
塔内径 [m]	0. 4	0. 2	0. 08
充てん物比表面積 [m ² /m ³]	500	500	500

【 0 0 8 8 】

【表 2】

				従来例 1	実施例 1
第 1 塔	凝縮器 フィード	熱交換量	[kW]	109. 6	109. 6
		流量	[mol/s]	1. 0 (ガス)	1. 0 (ガス)
		圧力	[kPa]	120	120
	上昇ガス 蒸発器	$^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 濃度	[ppm]	4070	4070
		流量	[mol/s]	16. 4	16. 4
		熱交換量	[kW]	106. 0	113. 2
第 2 塔	凝縮器 フィード	熱交換量	[kW]	24. 2	31. 7
		流量	[mol/s]	0. 53 (液)	0. 53 (ガス)
		圧力	[kPa]	156	120
	上昇ガス 蒸発器	$^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 濃度	[%]	2. 29	2. 01
		流量	[mol/s]	4. 2	4. 2
		熱交換量	[kW]	27. 2	28. 6
第 3 塔	凝縮器 フィード	熱交換量	[kW]	3. 8	5. 0
		流量	[mol/s]	0. 084 (液)	0. 084 (ガス)
		圧力	[kPa]	193	122
	上昇ガス 塔底製品	$^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 濃度	[%]	16. 9	15. 2
		流量	[mol/s]	0. 668	0. 668
		流量	[mol/s]	$4. 0 \times 10^{-4}$ (ガス)	$4. 0 \times 10^{-4}$ (ガス)
	蒸発器	圧力	[kPa]	230	160
		$^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 濃度	[-]	65. 0	67. 6
		熱交換量	[kW]	4. 4	4. 5
$^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ ホールド アップ	充てん層・凝縮器・蒸発器 [mol]			865	803
	液体供給配管 [mol]			109	2. 2
	合計 [mol]			974	805
起動時間 [日]				39	30

【0 0 8 9】

表 2 より、図 1 の装置を用いた実施例 1 の方法では、従来装置を用いた従来例 1 の方法に比べ、製品の $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ 濃度を高めることができることがわかる。

これは、実施例 1 の場合には、従来例 1 に比べ塔内圧力を低くすることができ、このため塔内において各成分間の蒸気圧比が大きくなり蒸留性能が向上するためであると考えられる。

【0 0 9 0】

また表2より、実施例1では、装置の起動時間の短縮が可能となることがわかる。これは、次の理由によるものであると考えられる。

従来例1では、第1塔と第2塔との間、および第2塔と第3塔との間の液体供給経路である配管のほとんどの部分が液で満たされるのに対し、実施例1では、第2塔から第1塔、第3塔から第2塔への液体供給経路である配管（返送経路14、15）内が液で満たされるのが第1塔と第2塔との間、第2塔と第3塔との間の塔底、塔頂の圧力差に相当する液ヘッド分に応じたわずかな部分のみとなる為である。

このため、実施例1では、液ホールドアップ量が小さくなり、装置の起動時間の短縮が可能となる。

【0091】

実施例1と従来例1を比較すると、液体供給配管内の ^{16}O ^{18}O 成分の液ホールドアップは、実施例1の方が従来例1に比べ圧倒的に優れた結果が得られた。特に塔径がこれら実施例1、従来例1よりも小さい場合には、液体供給配管径が相対的に大きくなると考えられるため本発明の装置と従来装置との間の装置全体の液ホールドアップの差が大きくなると考えられ、起動時間の点で、本発明装置の優位性がさらに明確となると考えられる。

また、酸素同位体の濃縮を、実施例1で用いた規則充填物に代えて不規則充填物を用いた蒸留塔を使用して行う場合には、実施例1に比べ、 ^{16}O ^{18}O 成分の液ホールドアップ量は、およそ3倍以上となると考えられる。これは、規則充填物の場合、液ホールドアップ量が充填層の体積の2~3%となるのに対し、不規則充填物の場合には10~20%となると考えられるためである。

このように、規則充填物を用いた場合には、液ホールドアップ量を小さくできることから、起動時間の大幅な短縮を図ることができる。

【0092】

また、本実施例1の方法は液ポンプを使用していないため、それを運転するための動力が不要である。

液ポンプを用いないことによるその他の効果として以下のことがある。

①装置・機器コストが低減される。

②液ポンプのメンテナンスに伴う、バックアップ用液ポンプとの切り換えなどがないため、装置を連続的に安定運転できる。

③液ポンプの運転コストが削減出来る。

④液ポンプによる侵入熱を削減することにより、寒冷補給（窒素サイクルなど）のための運転コストが削減出来る。

一方、各塔の凝縮器および蒸発器の熱交換量は、従来例よりも本実施例の方が大きく、運転コストの面では不利である。これは、本発明では、従来装置で第1塔から第2塔、第2塔から第3塔へフィードしていた液体をいったん蒸発器でガス化し、その後、凝縮器で液化しているためであり、また、従来装置で第2塔から第1塔、第3塔から第2塔へ戻していたガスをいったん凝縮器で液化し、その後蒸発器でガス化しているためである。

この点が本発明における、液ポンプが不要、蒸留塔塔頂圧力の低下の利点を得るための代償であるが、上記液ポンプを採用した従来法と比較すればこのデメリットはメリットに比較してはるかに小さい。

【0093】

[実施例2]

表4は、図1に示す蒸留装置を使用し、原料として水を用いて重酸素水の製造を行う場合のシミュレーションを行った結果を示すものである。なお装置仕様を表3に示す。

【0094】

[従来例2]

図19に示す従来の蒸留装置を使用し、原料として水を用いて重酸素水の製造を行う場合のシミュレーションを行った結果を表4に併せて示す。

この従来例2では、第1塔ないし第3塔の塔径、充填高さ、フィード量、製品量、還流比などを実施例2の場合と同様の値とした。

【0095】

【表 3】

	第 1 塔	第 2 塔	第 3 塔
充てん高さ [m]	100	100	100
塔内径 [m]	0. 1	0. 08	0. 06
充てん物比表面積 [m ² /m ³]	500	500	500

【0 0 9 6】

【表 4】

				従来例 2	実施例 2
第 1 塔	凝縮器 フィード	熱交換量	[kW]	26. 6	26. 6
		流量	[mol/s]	0. 01 (ガス)	0. 01 (ガス)
		圧力	[kPa]	127	127
	上昇ガス 蒸発器	H ₂ ¹⁸ O濃度	[ppm]	2040	2040
		流量	[mol/s]	0. 663	0. 663
		熱交換量	[kW]	25. 8	27. 3
第 2 塔	凝縮器 フィード	熱交換量	[kW]	16. 5	18. 1
		流量	[mol/s]	0. 0184 (液)	0. 0184 (ガス)
		圧力	[kPa]	151	120
	上昇ガス 蒸発器	H ₂ ¹⁸ O濃度	[ppm]	6640	6220
		流量	[mol/s]	0. 434	0. 434
		熱交換量	[kW]	17. 1	17. 6
第 3 塔	凝縮器 フィード	熱交換量	[kW]	9. 5	9. 9
		流量	[mol/s]	0. 00417 (液)	0. 0417 (ガス)
		圧力	[kPa]	177	120
	上昇ガス 塔底製品	H ₂ ¹⁸ O濃度	[%]	2. 73	2. 71
		流量	[mol/s]	0. 243	0. 243
		流量	[mol/s]	2. 0×10 ⁻⁵ (ガス)	2. 0×10 ⁻⁵ (ガス)
	蒸発器	圧力	[kPa]	200	152
		H ₂ ¹⁸ O濃度	[%]	9. 41	10. 7
		熱交換量	[kW]	9. 7	9. 7
16O18O ホールド アップ	充てん層・凝縮器・蒸発器 [mol]			40. 9	42. 3
	液体供給配管 [mol]			14. 2	0. 30
	合計 [mol]			55. 1	42. 6
起動時間 [口]				303	206

【0097】

表4より、図1の装置を用いた実施例2の方法では、従来装置を用いた従来例2の方法に比べ、製品の H_2^{18}O 濃度を高めることができることがわかる。

また、実施例2では、液ホールドアップ量が小さくなり、装置の起動時間の短縮が可能となることがわかる。

【0098】

[実施例3]

表7は、図12に示す蒸留装置を用いて重酸素水の製造を行う場合のシミュレーションを行った結果を示すものである。

酸素蒸留塔ユニット F_1 は、10本の蒸留塔を有し、水蒸留塔ユニット F_2 は、5本の蒸留塔を有するものとした。なお酸素蒸留塔ユニット F_1 の装置仕様を表5に、水蒸留塔ユニット F_2 の装置仕様を表6に示す。

【0099】

【表 5】

塔番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
高さ [m]	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
塔内径 [m]	0.7	0.5	0.4	0.3	0.25	0.20	0.15	0.10	0.05	0.05
充てん物比表面積 [m ² /m ³]	500	500	500	500	500	500	500	500	500	500
塔頂圧力 [kPa]	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120
塔底圧力 [kPa]	130	130	130	130	130	130	130	130	130	130
凝縮器熱交換量 [kW]	304.3	179.1	112.6	62.7	42.1	26.1	14.3	6.4	1.8	1.7
蒸発器熱交換量 [kW]	328.2	168.5	106.2	59.3	40.2	25.2	13.9	6.2	1.7	1.5

【 0 1 0 0 】

【表 6】

塔番号	1	2	3	4	5
高さ [m]	50	50	50	50	50
塔内径 [m]	90	75	60	50	40
充てん物比表面積 [m ² /m ³]	500	500	500	500	500
塔頂圧力 [kPa]	120	120	120	120	120
塔底圧力 [kPa]	130	130	130	130	130
凝縮器熱交換量 [kW]	18.8	13.3	8.5	5.9	3.8
蒸発器熱交換量 [kW]	19.2	13.2	8.4	5.9	3.6

【0 1 0 1】

【表 7】

酸素蒸留塔	フィードガス	流量	1.0mol/s
		¹⁶ O/ ¹⁸ O濃度	4070ppm
		(¹⁸ O原子分率)	2040ppm
	中間製品ガス	流量	4.0×10^{-4} (ガス)
		¹⁶ O/ ¹⁸ O濃度	95.9%
		(¹⁸ O原子分率)	48.3%
		¹⁶ O/ ¹⁸ Oホールドアップ	2550mol
	起動時間		71日
水蒸留塔	フィードガス	流量	8.0×10^{-4} (ガス)
		H ₂ ¹⁸ O濃度	48.3%
		(¹⁸ O原子分率)	48.3%
	製品ガス	流量	1.0×10^{-4} (ガス)
		H ₂ ¹⁸ O濃度	97.2%
		(¹⁸ O原子分率)	97.2%
		H ₂ ¹⁸ Oホールドアップ	948mol
	起動時間		68日

【0 1 0 2】

表 7 より、実施例 3 によれば、酸素同位体重成分 (¹⁸O) を 9 7 % 以上に濃縮した重酸素水を得ることができることがわかる。

この実施例 3 では、年間約 6 0 k g の生産量が得られ、装置の起動時間は、酸

素濃縮用の蒸留塔ユニット F_1 と、水蒸留用の蒸留塔ユニット F_2 を併せて約140日となることがわかる。

この実施例3のように、水蒸留を利用して酸素同位体重成分(^{18}O)の濃縮を行った例としては、US patent 5057225に記載されているように、Thode, Smith, and Walking: Canad. J. Res. 22, 127 (1944)に報告されたものがあり、この例では、3本の蒸留塔からなるカスケードプロセスにより、酸素同位体重成分(^{18}O)を1.3%まで濃縮した水150gが得られたことが報告されている。

この従来例では、起動に要した時間は120日間とされており、生産性を考慮すると、実施例3では、従来に比べ起動時間の大幅な短縮が可能となることがわかる。

【0103】

[実施例4]

表9は、図14に示す蒸留装置を用いて酸素同位体重成分(^{18}O)の濃縮を行う場合のシミュレーションを行った結果を示すものである。

また図16は、各塔内における各同位体成分の濃度分布を示すものである。

蒸留塔の数(n)は10とし、同位体スクランブラー47は第6塔と第7塔の間に設置することを想定した。なお装置仕様を表8に示す。表中、同位体スクランブラー供給ガスとは、経路48を通して同位体スクランブラー47に供給される導出ガス115を指し、同位体スクランブラー戻りガスとは、同位体スクランブラー47から導出され、経路49を通して塔 A_i に供給される同位体スクランブラー戻りガス116を指す。

【0104】

【表 8】

塔番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
高さ [m]	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
塔内径 [m]	230	170	120	88	64	47	34	25	18	13
充てん物比表面積 [m^2/m^3]	500	500	500	500	500	500	500	500	500	500
塔頂圧力 [kPa]	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120
塔底圧力 [kPa]	130	130	130	130	130	130	130	130	130	130
凝縮器熱交換量 [kW]	36.24	21.82	10.19	5.40	2.82	1.50	0.77	0.40	0.21	0.11
蒸発器熱交換量 [kW]	38.14	20.19	10.00	5.35	2.81	1.50	0.76	0.40	0.21	0.10

【0 1 0 5】

【表 9】

酸素蒸留塔	フィードガス	流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	0.3mol/s 4070ppm 4.2ppm 2040ppm 6.0×10^{-4} mol 51.4% 16.2% 42.1%
	同位体スクランブラー供給ガス	流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	6.0×10^{-4} mol 48.3% 17.7% 42.1%
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	1.0×10^{-5} mol 5.5% 94.1% 97.0%
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	222mol 55mol 73日
	同位体スクランブラー戻りガス	流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
	製品ガス	流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
	16O18Oホールドアップ 18O18Oホールドアップ 起動時間	流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	
		流量 16O18O 濃度 18O18O 濃度 (18O原子分率)	

【0 1 0 6】

表 9 より、実施例 4 によれば、酸素同位体重成分 (^{18}O) を 9 7 % 以上に濃縮した濃縮物を得ることができることがわかる。

この実施例 4 では、年間約 1 2 k g の生産量が得られ、装置の起動時間は、 7

3日となることがわかる。

【0107】

本実施形態例で示した装置では、製品ガスに同伴される $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ の流量は、

$$[\text{製品ガス流量}] \times [\text{製品ガス中}^{18}\text{O}^{18}\text{O} \text{濃度}]$$

$$= 1 \times 10^{-5} (\text{mol/s}) \times 0.941 = 9.4 \times 10^{-6} (\text{mol/s})$$
 である。

一方、フィードガスに同伴され装置内に供給される $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ の流量は、

$$[\text{フィードガス流量}] \times [\text{フィードガス中}^{18}\text{O}^{18}\text{O} \text{濃度}]$$

$$= 0.3 (\text{mol/s}) \times 4.2 \times 10^{-6} = 1.3 \times 10^{-6} (\text{mol/s})$$
 であり、製品ガスに同伴される $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ の流量よりもはるかに小さい。

本実施形態例において同位体スクランブラーは、上記 $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ の不足分を補うために設けられている。すなわち、蒸留塔内で $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ が高濃度（45%以上であることが望ましい）に濃縮された酸素ガスを同位体スクランブラーで処理することにより、新たに $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ を生成させ、それを再び蒸留塔に戻すことによって、フィードガスで供給された $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ の量よりも多くの $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ を製品として採取することができる。本実施形態例では表9からわかるように、同位体スクランブラーによって以下の式に示す量の $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ が生成されている。

$$[\text{同位体スクランブラー処理量}] \times \{ [\text{}^{18}\text{O}^{18}\text{O} \text{出口濃度}] - [\text{}^{18}\text{O}^{18}\text{O} \text{入口濃度}] \}$$

$$= 6.0 \times 10^{-4} \times [0.177 - 0.162]$$

$$= 9.0 \times 10^{-6} (\text{mol/s})$$

【0108】

これを、フィードガスによって供給される $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ 、 $1.3 \times 10^{-6} (\text{mol/s})$ と合わせると、蒸留塔に供給されるトータルの $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ は $10.3 \times 10^{-6} (\text{mol/s})$ となるため、製品によって上記 $9.4 \times 10^{-6} (\text{mol/s})$ の $^{18}\text{O}^{18}\text{O}$ を採取することが可能になる。

仮に、同位体スクランブラーを設けなかった場合には、フィードガス量を最低でも $(9.4 \times 10^{-6}) / (1.3 \times 10^{-6}) = 7.2$ 倍以上にしなければならず、それに伴い、塔径の大きな蒸留塔が必要となる。これはホールドアップ、起

動時間の観点から好ましくない。すなわち本実施形態例で示した装置では、同位体スクランブラーを設けることにより、従来よりも塔径の小さな装置で、酸素同位体重成分が濃縮された製品を採取することができる。

【0109】

【実施例5】

表10は図1の装置と全く同じプロセスを採用して蒸留塔の本数を16塔に増やした装置により、酸素安定同位体の蒸留をシミュレーションによって行った結果を示したものである。この蒸留装置の仕様を表11に示す。

【0110】

【表10】

フィード (液)	流量(mol/s)	0.1
	^{16}O ^{17}O 濃度(^{17}O 原子分率)(ppm) ^{16}O ^{18}O 濃度(^{18}O 原子分率)(ppm)	738(370) 4070(2040)
製品ガス1 (第11塔塔底 より採取)	流量(mol/s)	8.0×10^{-6}
	^{16}O ^{17}O 濃度(^{17}O 原子分率)(%)	49.6(24.8)
	^{16}O ^{18}O 濃度(^{18}O 原子分率)(%)	36.7(18.4)
製品ガス2 (第16塔塔底 より採取)	流量(mol/s)	1.65×10^{-4}
	^{16}O ^{17}O 濃度(^{17}O 原子分率)(%)	3.8(1.9)
	^{16}O ^{18}O 濃度(^{18}O 原子分率)(%)	96.0(48.2)

※フィードは第1塔に供給する。

【0111】

【表 1 1】

塔番号	1	2	3	4	5	6	7	8
高さ (m)	80	80	80	80	80	80	80	80
塔の内径 (mm)	320	320	320	320	240	240	180	180
充填物比表面積 (m^2/m^3)	500	500	500	500	500	500	500	500
塔頂圧力 (kPa)	120	120	120	120	120	120	120	120
塔底圧力 (kPa)	140	140	140	140	140	140	140	140
凝縮器交換熱量 (kW)	65.15	73.81	73.53	72.57	41.25	40.59	22.92	22.22
蒸発器交換熱量 (kW)	73.31	73.54	72.58	69.98	40.61	39.09	22.28	21.36

塔番号	9	10	11	12	13	14	15	16
高さ (m)	80	80	80	80	80	80	80	80
塔の内径 (mm)	130	130	100	100	72	72	55	55
充填物比表面積 (m^2/m^3)	500	500	500	500	500	500	500	500
塔頂圧力 (kPa)	120	120	120	120	120	120	120	120
塔底圧力 (kPa)	140	140	140	140	140	140	140	140
凝縮器交換熱量 (kW)	11.42	10.95	6.36	6.23	3.21	3.19	1.86	1.86
蒸発器交換熱量 (kW)	11.05	10.76	6.29	6.20	3.20	3.18	1.86	1.83

【0 1 1 2】

本実施例は中間成分である $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ を濃縮した製品を得ることを目的として、蒸留塔のトータルの高さを高くしたケースである。

図 1 7 は塔内の各酸素同位体の組成分布を示したもので、該実施例では第 1 0 塔～第 1 2 塔付近に $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ のピークが出現するので、これらの塔の少なくとも 1 個所から液またはガスを採取することにより $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ 濃縮製品を得ることが出来る。

この実施例では第 1 1 塔の塔底（リボイラー出口）からガスを製品ガス 1 として採取した。また第 1 6 塔の塔底部から導出されたガスを製品ガス 2 として採取した。

この例では、製品 1 の $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ の濃度は 5 0 % 程度であるが、さらに蒸留塔のトータルの高さを大きくすれば、より濃縮された $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ を得ることが出来る。

【0 1 1 3】

本実施例においてフィードは 9 9 . 9 9 9 % 以上に精製した酸素を第 1 塔に供給する。フィード中の $^{16}\text{O}^{17}\text{O}$ は 7 3 8 p p m、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ は 4 0 7 0 p p m であ

る。

製品ガス 1 は第 1 1 塔塔底から採取する。この製品ガス 1 2 を通常の使用形態である水にするために水素添加装置で処理すれば¹⁷O 濃度が約 2 5 % の重酸素水が得られる。

製品ガス 2 は第 1 6 塔塔底から採取する。これを水素添加装置で処理すれば¹⁸O 濃度が約 4 8 % の重酸素水が得られる。

【0 1 1 4】

¹⁷O 濃縮製品が不要で、¹⁶O¹⁸O 濃縮ガスである製品ガスのみが必要な場合は、蒸留のトータルの高さはこの例よりもはるかに小さくて済む。その場合には、¹⁶O¹⁷O のピーク時の組成は 1 % 程度になる。即ち、図 1 7 の¹⁶O¹⁸O の組成分布に注目すると、第 1 塔から第 6 塔付近までは、組成の傾きが小さくなっており、¹⁶O¹⁷O を高濃度に濃縮するために、本実施例では¹⁶O¹⁸O 成分にとっては必要以上にトータルの高さを大きくしている。即ち、トータルの充てん高さを大きくすれば、本発明の装置で中間成分の濃縮が可能であることがわかる。

【0 1 1 5】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明にあっては、第 k 塔 ($1 \leq k \leq (n-1)$) の塔底部あるいは該塔底部付近に設けた蒸発器の出口と、第 $(k+1)$ 塔の塔頂部あるいは該塔頂部付近に設けた凝縮器の入口または該塔の中間部とを連結する導入経路と、第 $(k+1)$ 塔の凝縮器出口と、第 k 塔の塔底部付近に設けた蒸発器の入口あるいは該塔の塔底部または該塔の中間部とを連結する返送経路を設けるので、この返送経路を通して第 $(k+1)$ 塔の凝縮器からの導出液の一部を返送することができる。

このため、各塔圧力を従来に比べ低く設定することができ、各塔内における各同位体成分間の蒸気圧比を大きくし、蒸留性能を向上させることができる。

従って、各塔の充填高さを低くすることができ、起動時間の短縮を図ることができる。また酸素同位体重量成分を高濃度で含有する製品を得ることができる。

また、液ホールドアップ量を小さくし、いっそうの装置の起動時間の短縮が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の蒸留装置の第 1 の実施形態例を示す概略構成図である。

【図 2】 本発明の蒸留装置に用いられる非自己分配促進型規則充填物の一例を示す斜視図である。

【図 3】 本発明の蒸留装置に用いられる非自己分配促進型規則充填物の他の例を示す斜視図である。

【図 4】 本発明の蒸留装置に用いられる自己分配促進型規則充填物の一例を示す斜視図である。

【図 5】 本発明の蒸留装置に用いられる自己分配促進型規則充填物の他の例を示す斜視図である。

【図 6】 本発明の蒸留装置に用いられる自己分配促進型規則充填物のさらに他の例を示す斜視図である。

【図 7】 本発明の蒸留装置の第 2 の実施形態例を示す概略構成図である。

【図 8】 本発明の蒸留装置の第 3 の実施形態例を示す概略構成図である。

【図 9】 図 8 に示す装置の変形例を示す構成図である。

【図 10】 本発明の蒸留装置の他の実施形態例を示す概略構成図である。

【図 11】 図 10 に示す蒸留装置に用いられる熱媒体流体の循環経路を示す概略構成図である。

【図 12】 本発明の蒸留装置のさらに他の実施形態例を示す概略構成図である。

【図 13】 図 12 に示す蒸留装置の水素添加反応装置を示す概略構成図である。

【図 14】 本発明の蒸留装置のさらに他の実施形態例を示す概略構成図である。

【図 15】 図 14 に示す蒸留装置に用いられる同位体スクランブラーの例を示す概略構成図である。

【図 16】 図 14 に示す装置を用いた場合を例として、酸素同位体重成分の濃縮をシミュレートした結果を示すグラフであり、各塔内の各同位体成分の濃度分布を示すものである。このグラフにおいて、横軸はトータルの充填高さ、縦軸は各同位体成分の濃度を示す。

【図 17】 蒸留塔の数が 16 であること以外は図 1 に示す装置と同様の構成を採用した蒸留装置を用いた場合を例として、酸素同位体重量成分の濃縮をシミュレートした結果を示すグラフであり、各塔内の各同位体成分の濃度分布を示すものである。このグラフにおいて、横軸はトータルの充填高さ、縦軸は各同位体成分の濃度を示す。

【図 18】 従来の蒸留装置の一例を示す概略構成図である。

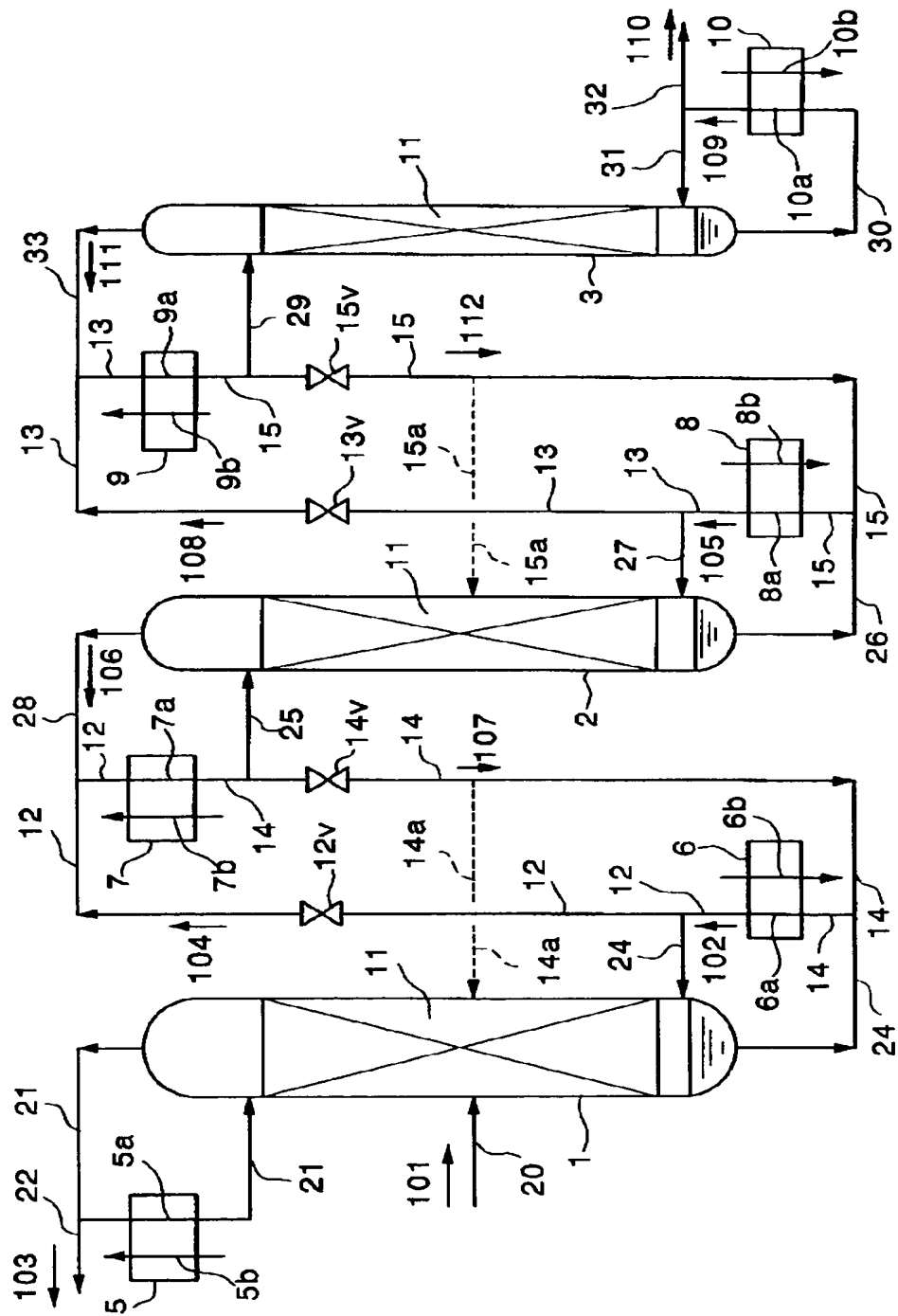
【図 19】 従来の蒸留装置の他の例を示す概略構成図である。

【符号の説明】

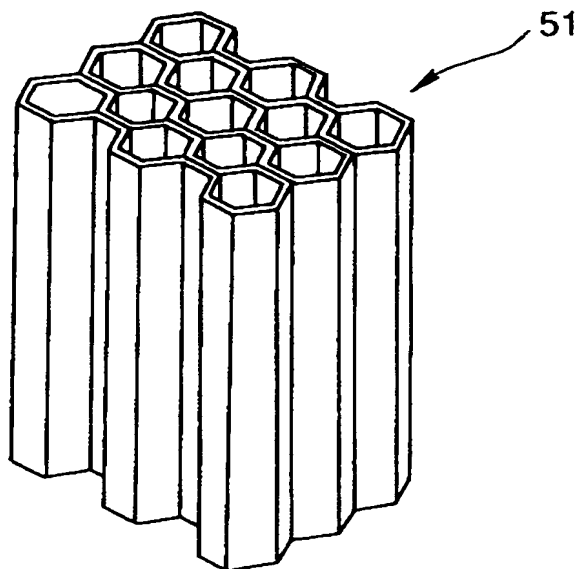
- 1、2、3、 $A_1 \sim A_n$ …蒸留塔
- 5、7、9、…凝縮器
- 6、8、10…蒸発器
- 11…規則充填物
- 12、13、35、36、 $D_1 \sim D_{n-1}$ …導入経路
- 14、15、37、38、37'、38'、 $E_1 \sim E_n$
- -1 …返送経路
- 41、42…ブロワ
- 47…同位体スクランブラー
- 51、52…非自己分配促進型規則充填物
- 53、54、55…自己分配促進型規則充填物
- 300A…水素添加反応装置

【書類名】 図面

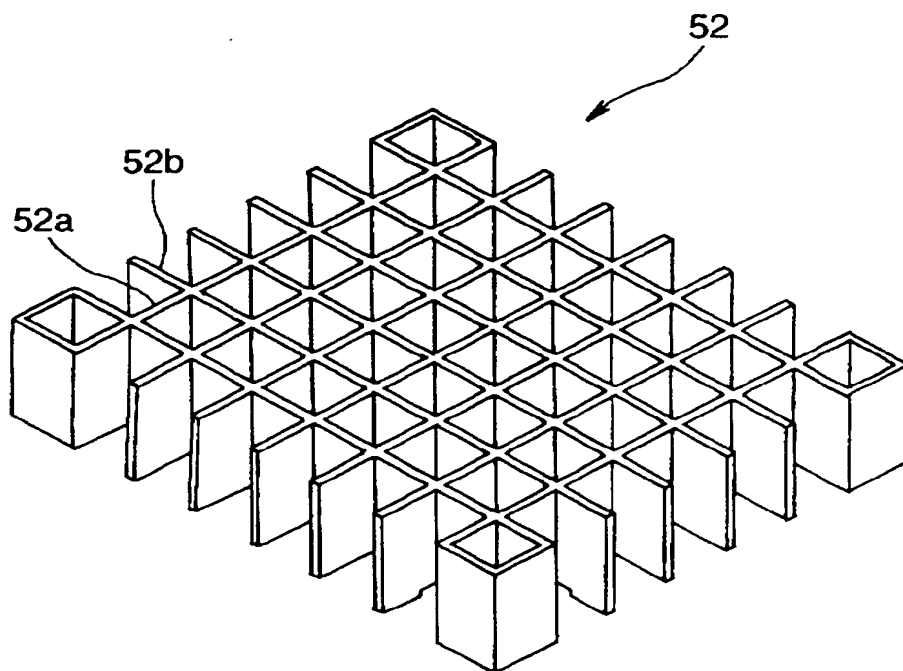
【図 1】



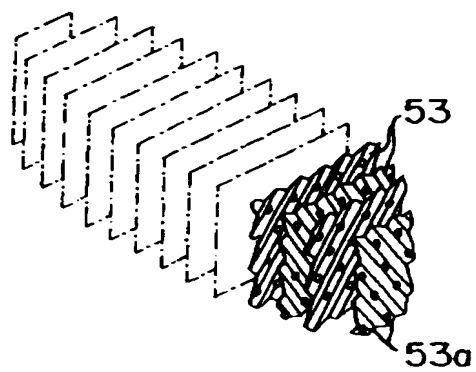
【図 2】



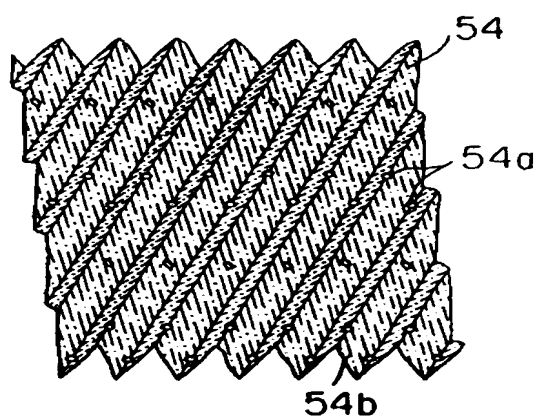
【図 3】



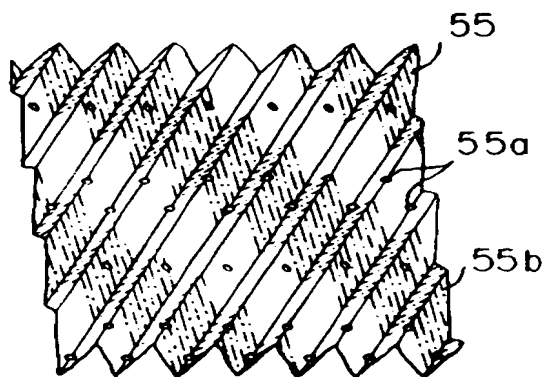
【図4】



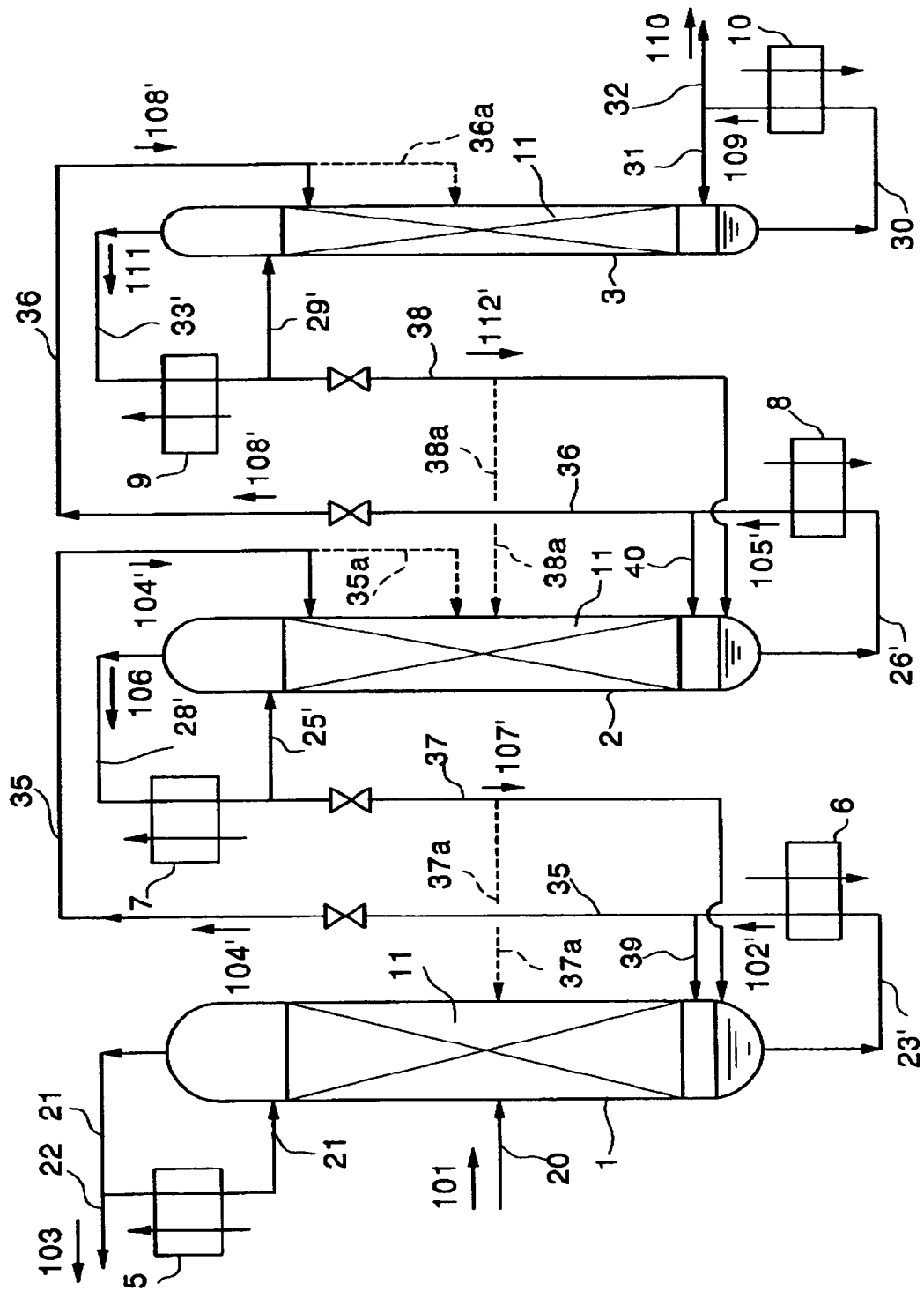
【図5】



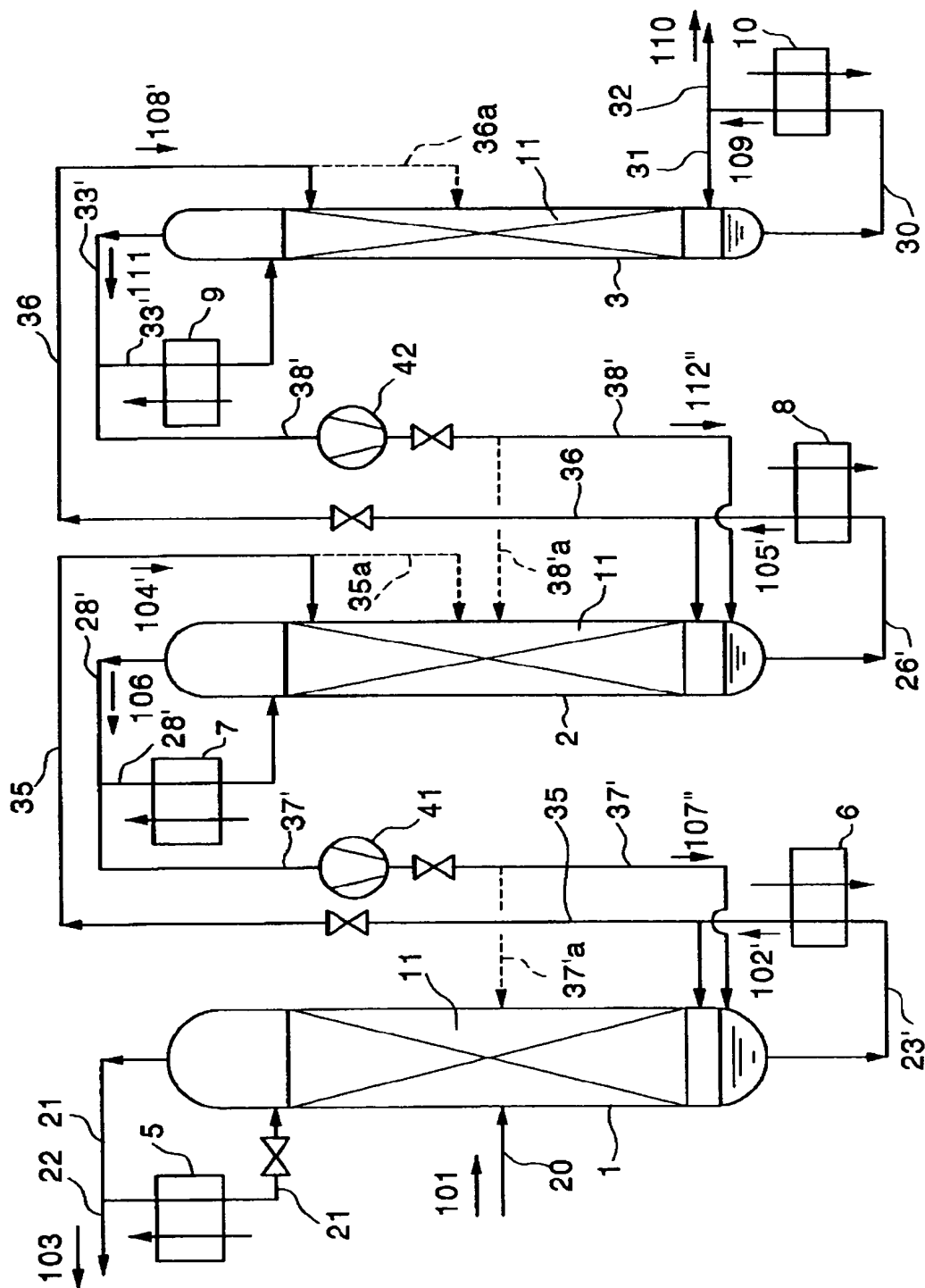
【図6】



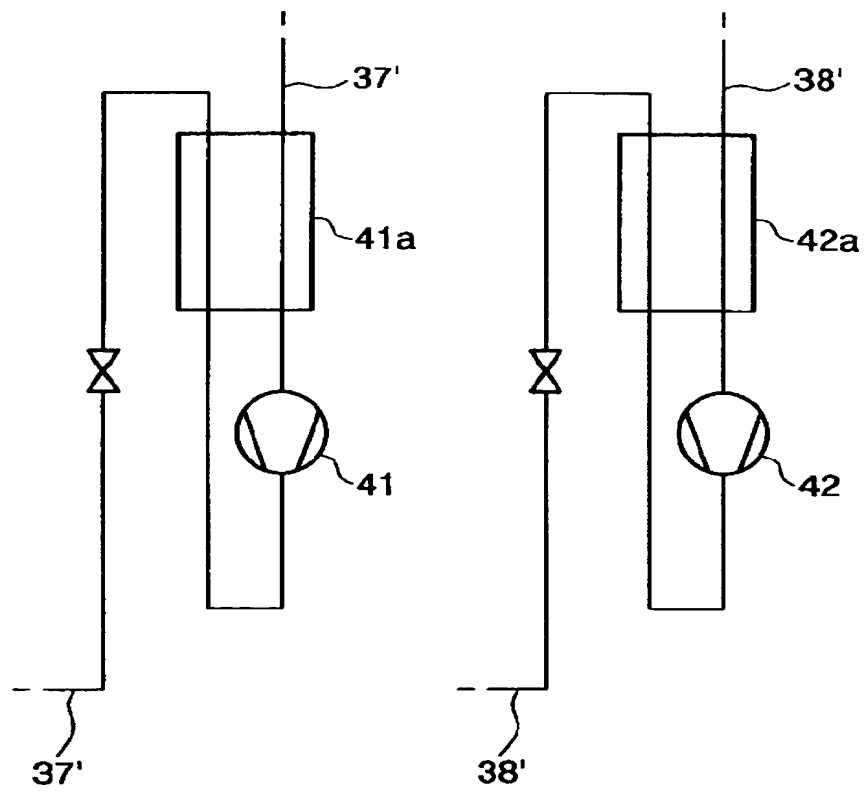
【図 7】



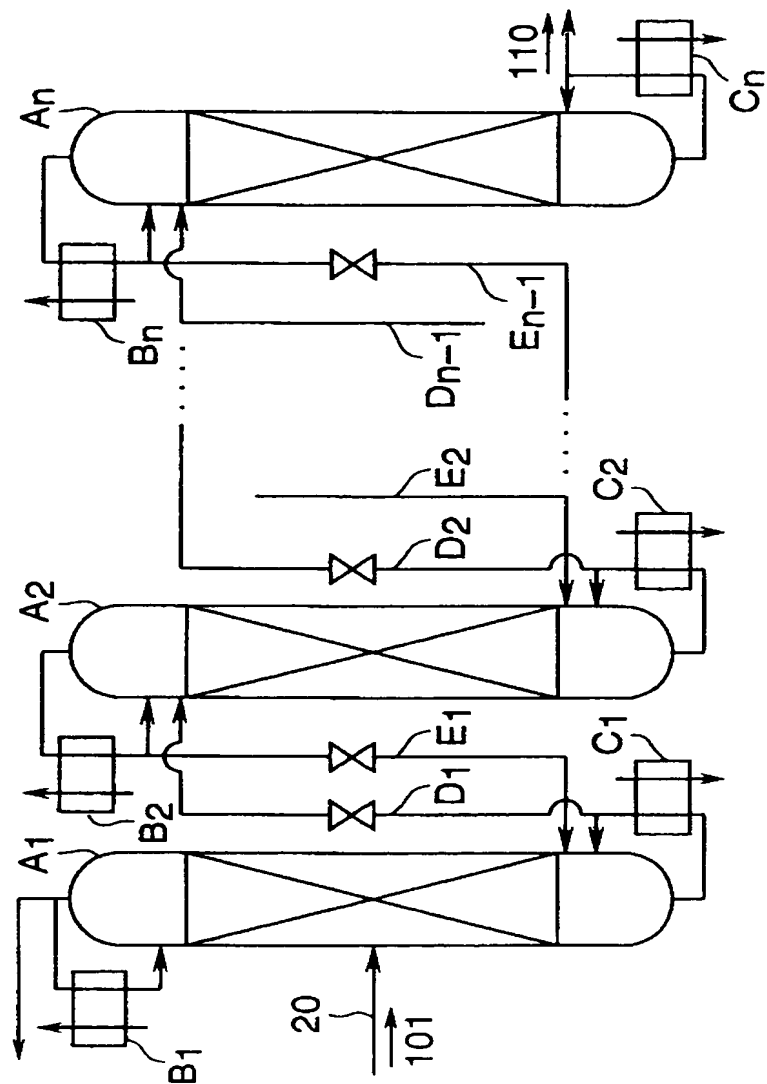
【図 8】



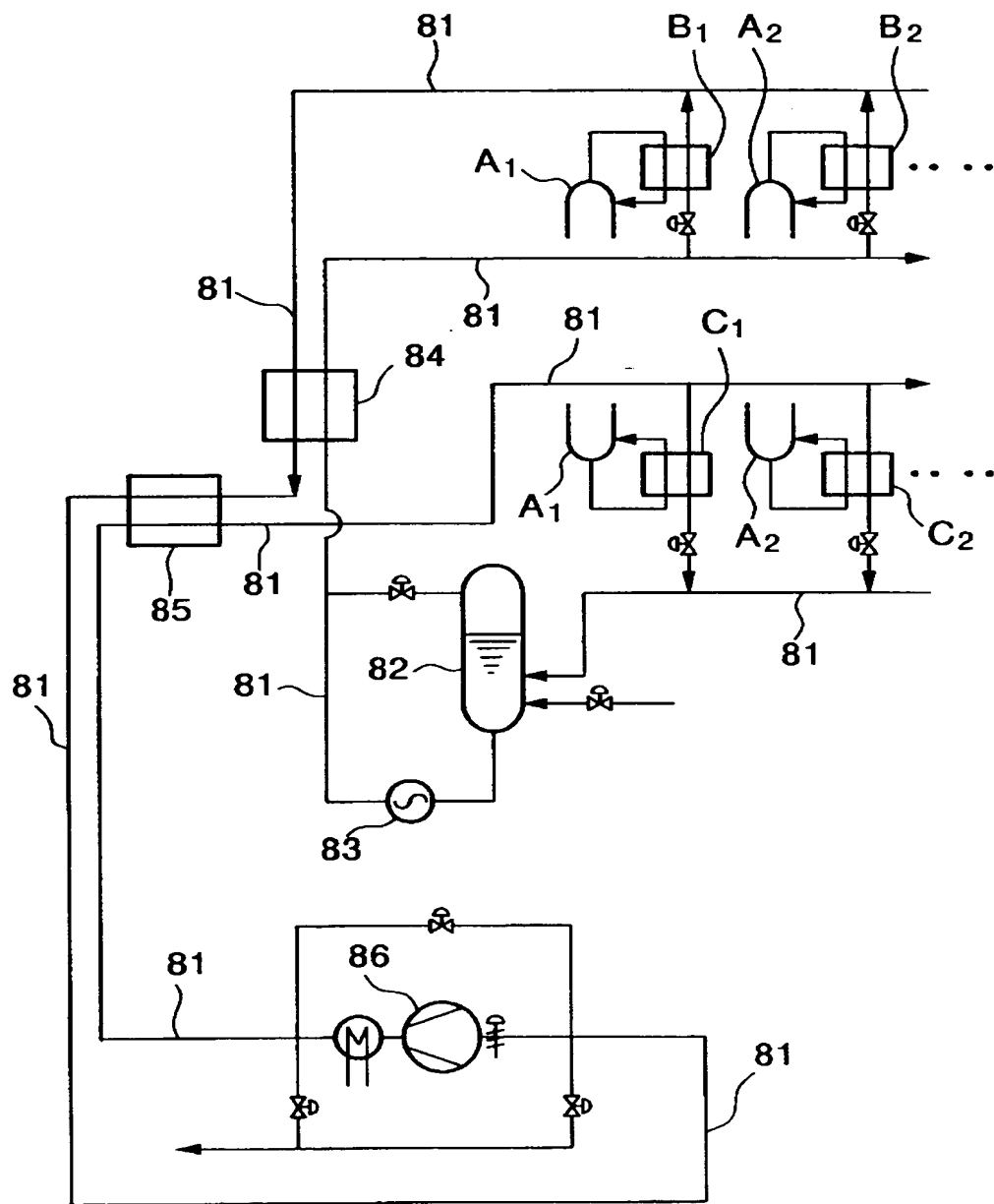
【図 9】



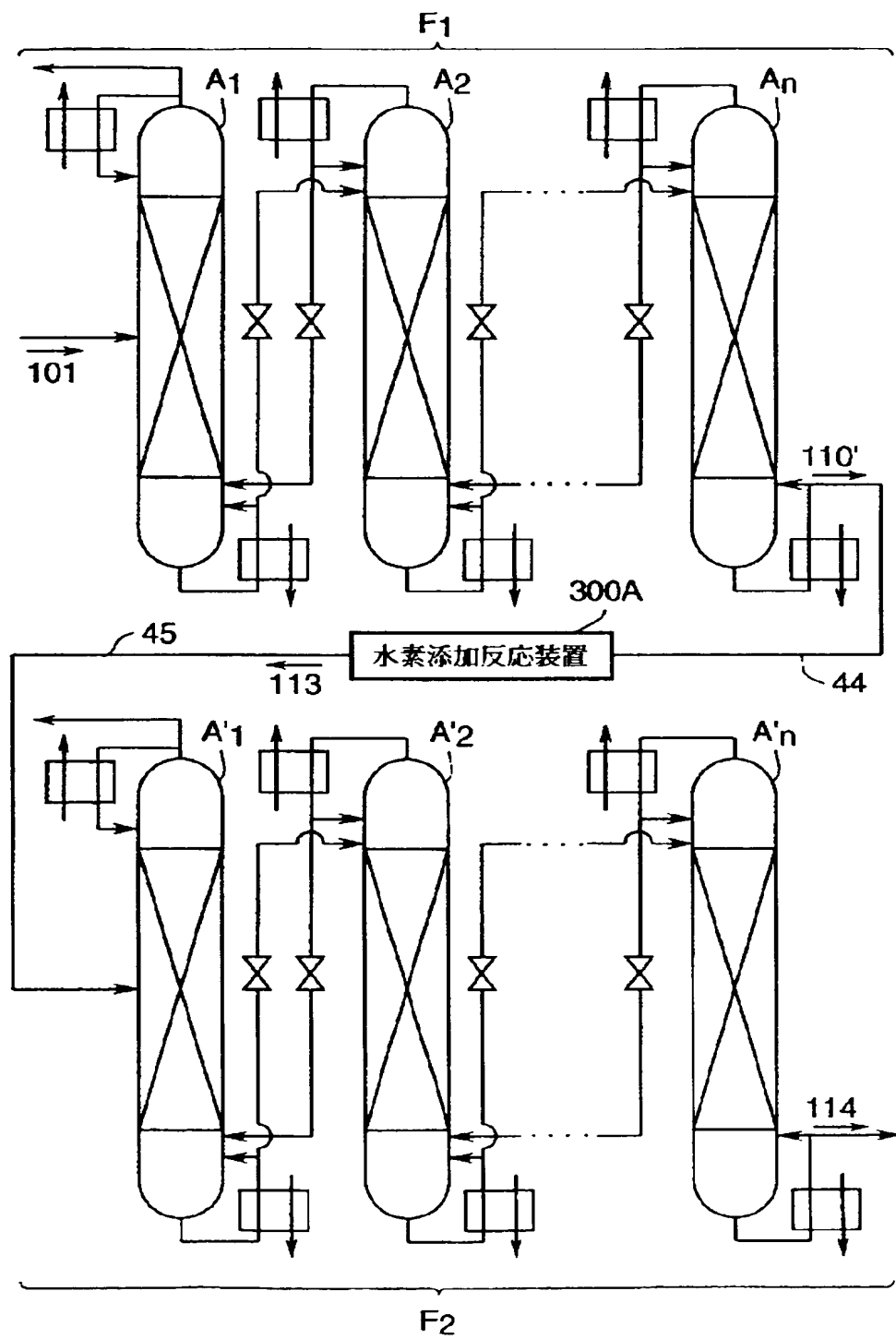
【図 1 0】



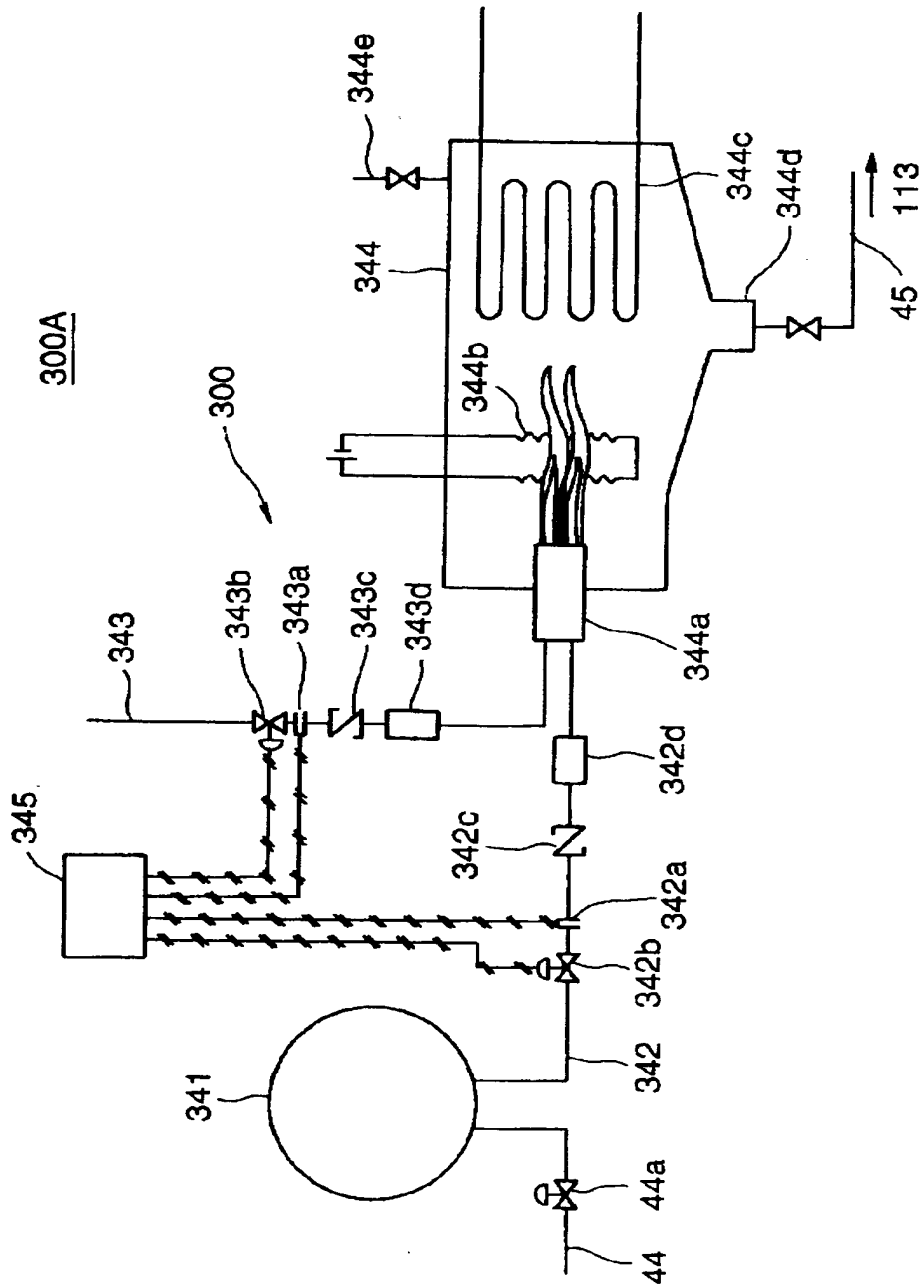
【図 11】



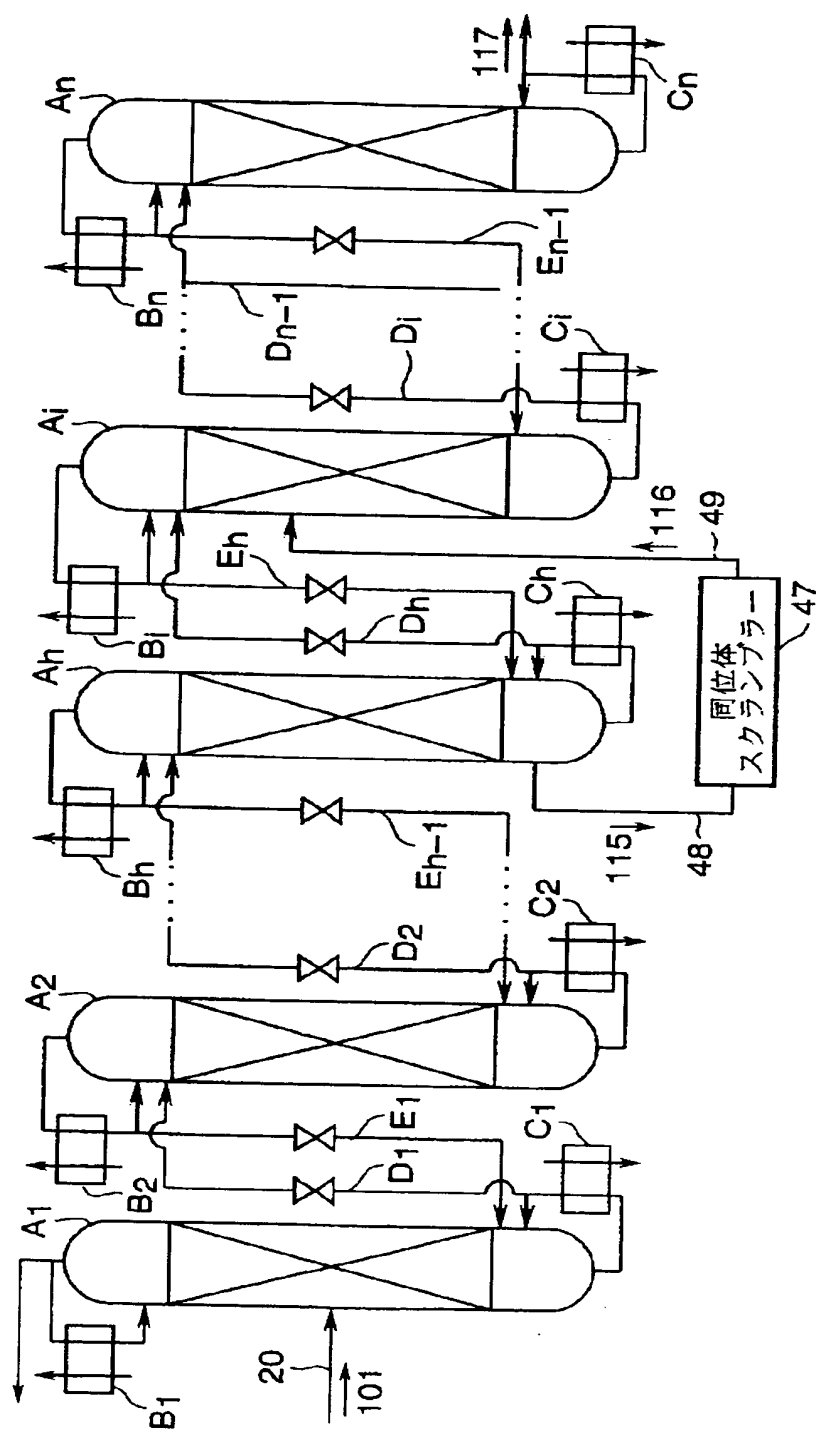
【図 12】



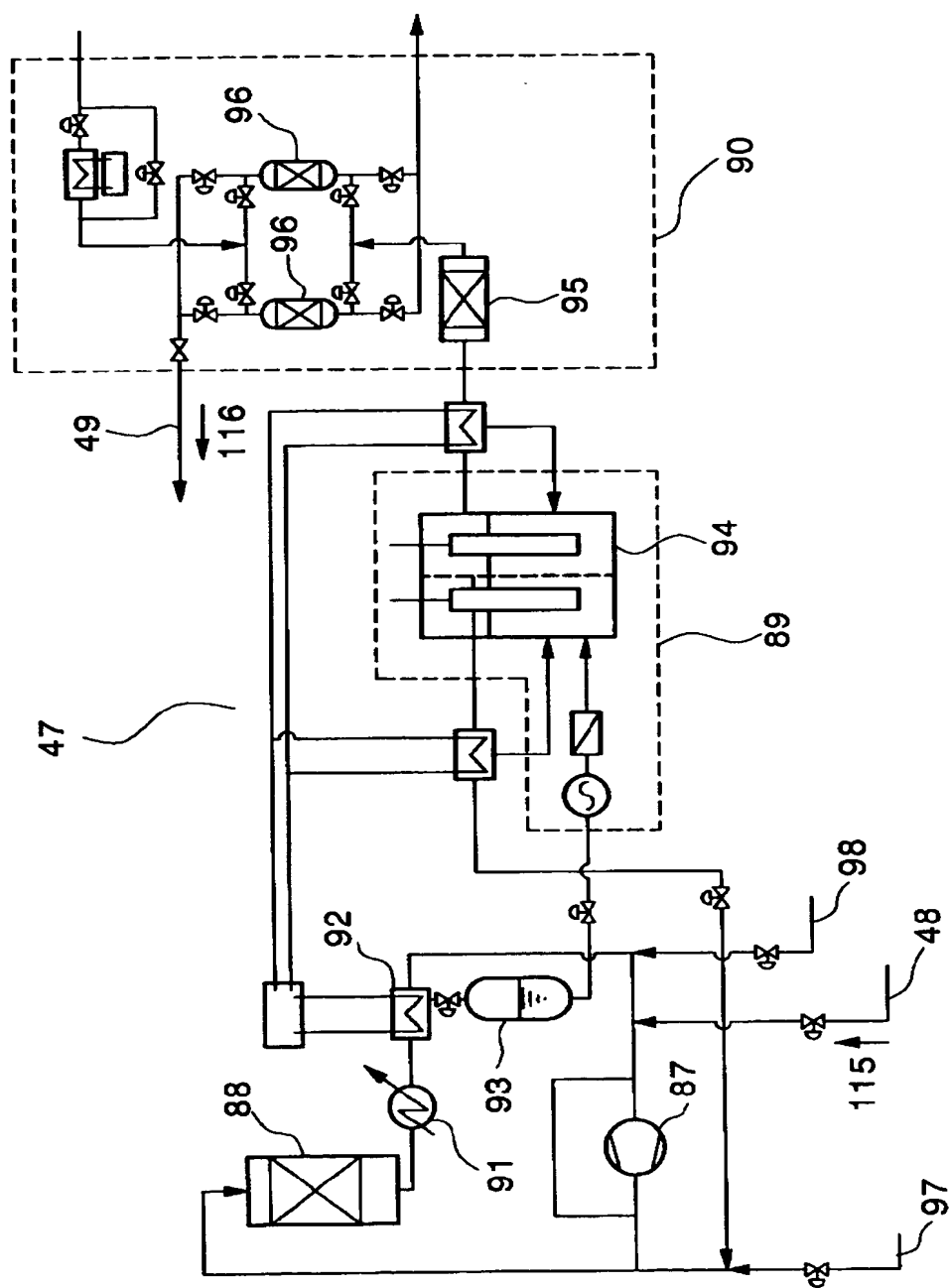
【図 13】



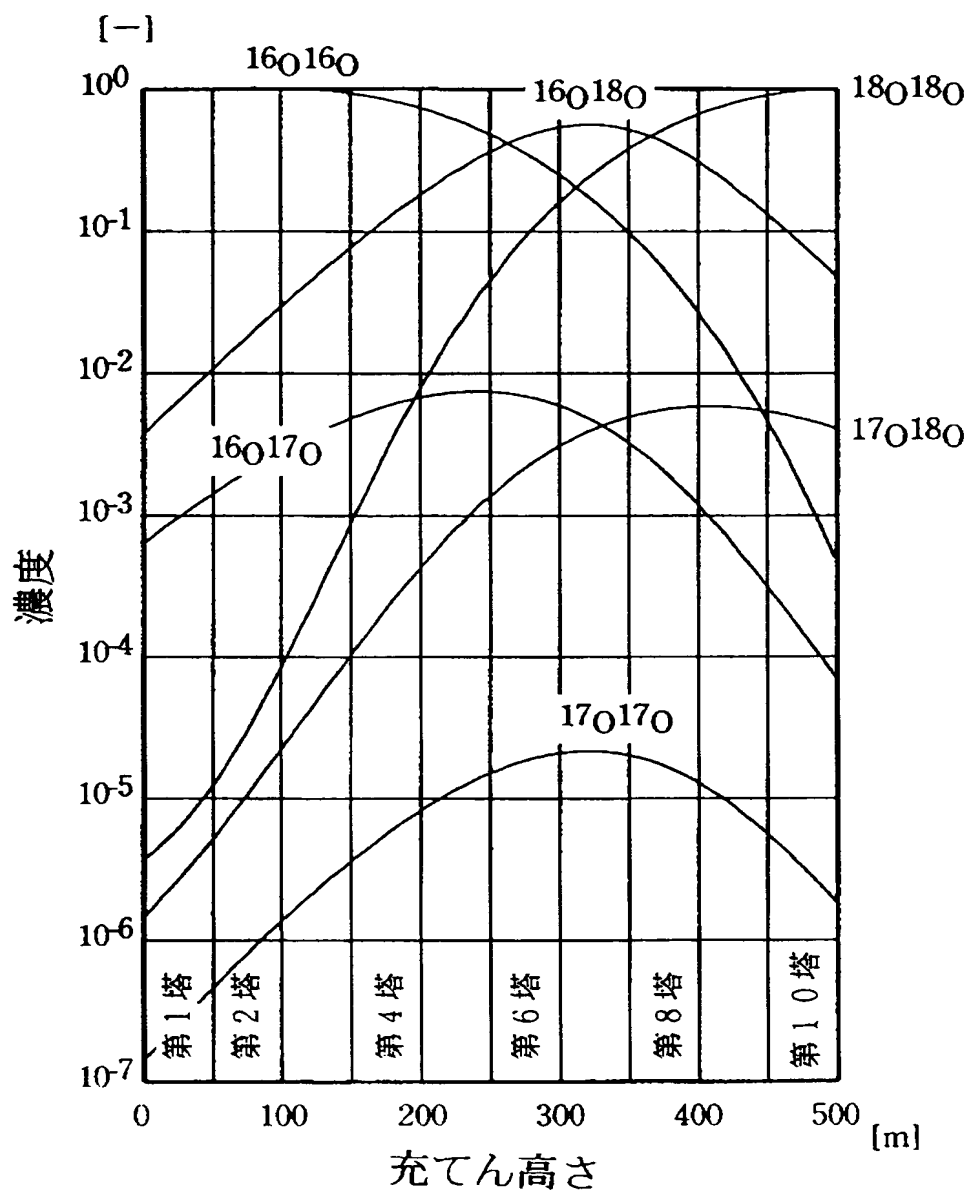
【図 14】



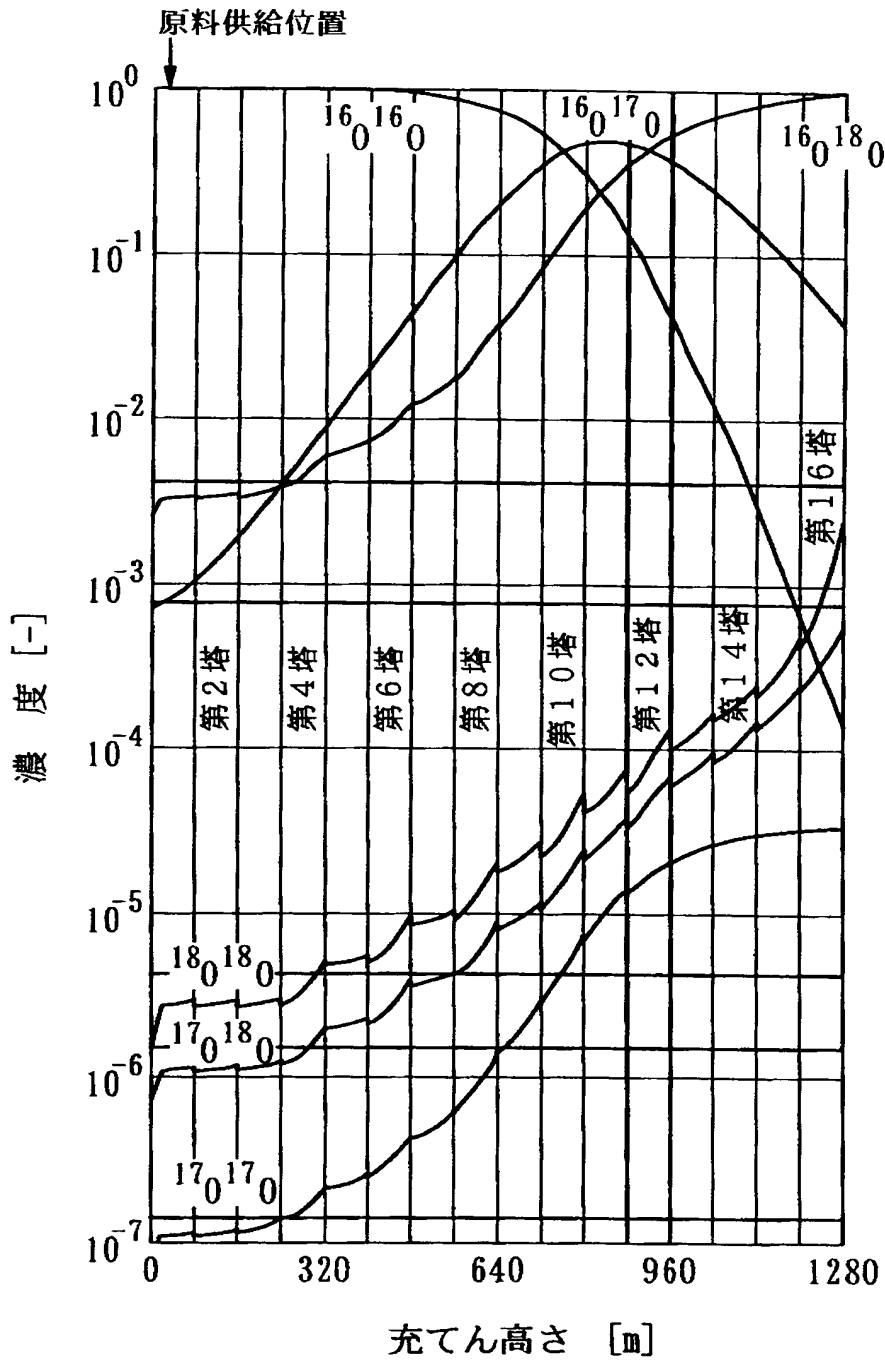
【図 15】



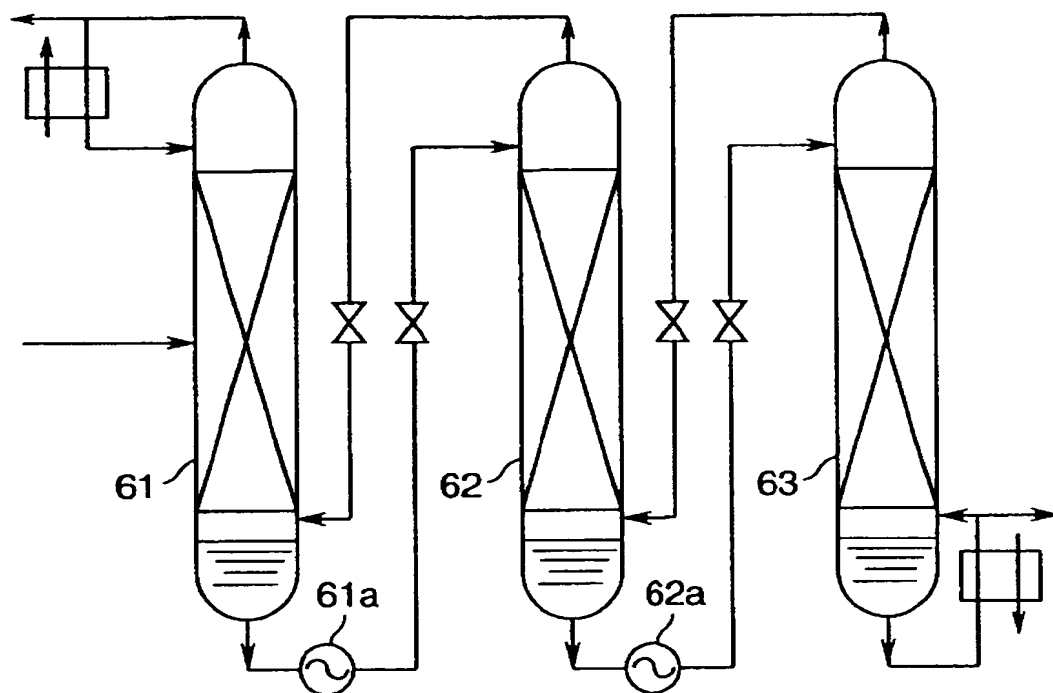
【図 16】



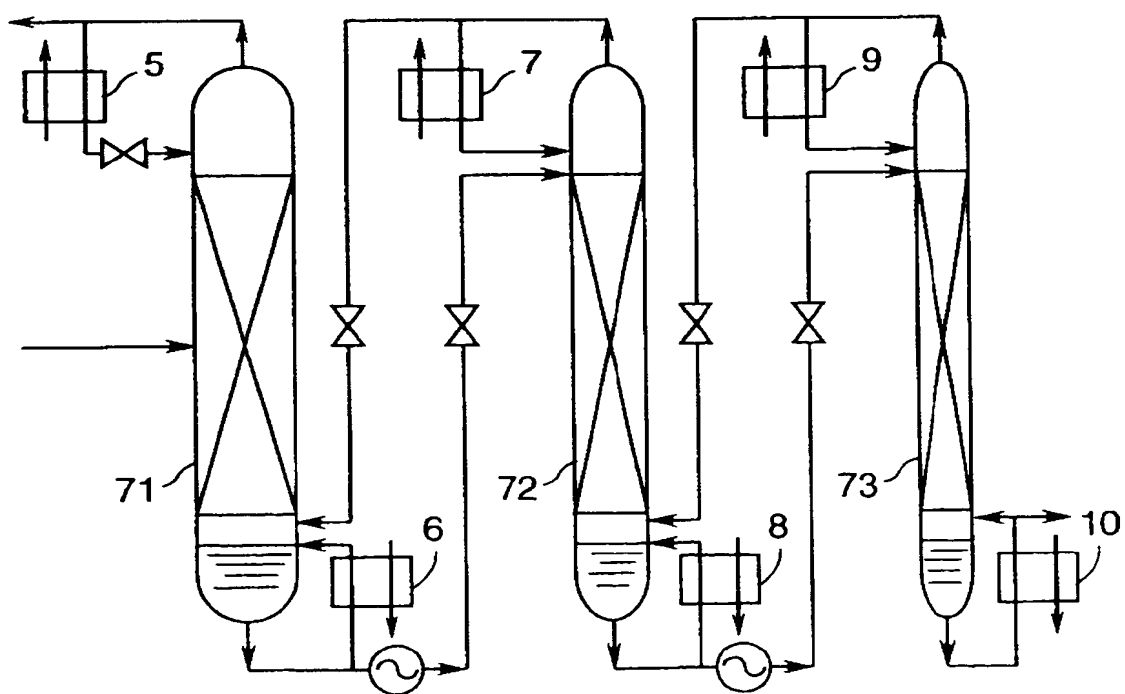
【図 17】



【図 18】



【図 19】



特平 1 1 - 2 9 0 2 5 9

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 起動時間の短縮が可能な蒸留装置を提供する。

【解決手段】 第 1 ないし第 3 塔 1、2、3 を備え、第 1 塔蒸発器 6 の出口と第 2 塔凝縮器 7 の入口とが第 1 の導入経路 1 2 で接続され、第 2 塔蒸発器 8 の出口と、第 3 塔凝縮器 9 の入口とが第 2 の導入経路 1 3 で接続され、かつ第 2 塔凝縮器 7 の出口と第 1 塔蒸発器 6 の入口とが第 1 の返送経路 1 4 で接続され、第 3 塔凝縮器 9 の出口と第 2 塔蒸発器 8 の入口とが第 2 の返送経路 1 5 で接続されている。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	平成 11 年 特許願 第 290259 号
受付番号	59900997501
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成 11 年 10 月 14 日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】 000231235

【住所又は居所】 東京都港区西新橋 1 丁目 16 番 7 号

【氏名又は名称】 日本酸素株式会社

【代理人】 申請人

【識別番号】 100064908

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】 100108578

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 高橋 詔男

【選任した代理人】

【識別番号】 100089037

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 渡邊 隆

【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】 青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100094400

【住所又は居所】 東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ
ル 志賀国際特許事務所

次頁有

認定 - 付加情報 (続き)

【氏名又は名称】	鈴木 三義
【選任した代理人】	
【識別番号】	100106493
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	松富 豊
【選任した代理人】	
【識別番号】	100107836
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	西 和哉
【選任した代理人】	
【識別番号】	100108453
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場3丁目23番3号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	村山 靖彦

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000231235]

1. 変更年月日	1990年 8月16日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都港区西新橋1丁目16番7号
氏 名	日本酸素株式会社